



KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
GESELLSCHAFT MIT BESCHRÄNKTER HAFTUNG
Zentralabteilung Forschungsreaktoren

**Abbrandbestimmung
durch irreversible Beimischung
aktivierbarer Isotope zum Kernbrennstoff**

von

Erwin Münch

JÜL - 712 - RE
Dezember 1970

Als Manuskript gedruckt



Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 712
 Zentralabteilung Forschungsreaktoren Jül - 712 - RE

Dok.: Reactor Fuels - Burnup
 Reactors, Pebble-Bed - Burnup

Im Tausch zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich GmbH,
 Jülich, Bundesrepublik Deutschland

**Abbrandbestimmung
durch irreversible Beimischung
aktivierbarer Isotope zum Kernbrennstoff**

von

Erwin Münch

D 82 (Diss. T. H. Aachen)

Inhaltsverzeichnis

	<u>Seite</u>
Zusammenfassung	7
Einleitung	9
1. Bekannte Verfahren der Abbrandbestimmung	11
1.1. Zerstörende Verfahren	11
1.2. Zerstörungsfreie Verfahren	12
1.2.1. Neutronenphysikalische Methoden	13
1.2.2. Reaktorphysikalische Methoden	13
1.2.3. Spektroskopische Methoden	14
2. Abbrandbestimmung durch Zugabe aktivier- barer Isotope	19
2.1. Erläuterung der Methode	19
2.2. Anforderungen an benutzte Isotope	20
2.3. Einzeldarstellung brauchbarer Isotope	24
2.4. Möglichkeiten der Beimischung	32
3. Physikalische Voraussetzungen der Methode	36
3.1. Untersuchung des Spaltproduktspektrums	36
3.2. Spektroskopische Betrachtung der beigege- benen Isotope	45
4. Experimentelle Bestätigung mit Kobalt	54
4.1. Herstellung der Kobaltmonitore	54
4.2. Identifizierung der Kobaltbeimischung im Spaltproduktspektrum	55
4.3. Eichung der Meßapparatur	58
4.4. Vergleichsmessung zur Abbrandbestimmung	60

	<u>Seite</u>
5. Anwendung auf Kugelhaufenreaktoren	64
5.1. Kühlzeit nach Bestrahlungsende	64
5.2. Art der Beimischung zum Brennstoff	65
5.3. Erforderliche Menge der Beimischung	66
5.4. Anforderungen an die Meßzeit	69
5.5. Reaktivitätsabsorption	74
5.6. Abhängigkeit der Abbrandbestimmung von der Bestrahlungsgeschichte	75
5.6.1. Problemstellung und Rechenmethode	75
5.6.2. Ergebnisse	80
6. Hinweise für die technische Anwendung	89
6.1. Anti-Compton-Anordnung	89
6.2. Kollimatoren	90
6.3. Relative Eichung der Apparatur	90
7. Weitere Anwendungsbereiche des Verfahrens	92
8. Schlußbetrachtung	94
Literaturverzeichnis	95

Verzeichnis der Abbildungen

	<u>Seite</u>
Abb. 2.1 Abhängigkeit des Gesamtabbrandes von der Neutronenfluenz. ($10^{20} \text{ n/cm}^2 \leq \phi \cdot t$ $\leq 10^{22} \text{ n/cm}^2$)	23
Abb. 2.2 Aktivierungsdaten für die Reaktion $\text{Co}^{59} (n, \gamma) \text{Co}^{60}$	26
Abb. 2.3 Aktivierungsdaten für die Reaktion $\text{Zn}^{64} (n, \gamma) \text{Zn}^{65}$	27
Abb. 2.4 Aktivierungsdaten für die Reaktion $\text{Ag}^{109} (n, \gamma) \text{Ag}^{110m}$	28
Abb. 2.5 Zeitkorrekturfaktoren für die Benutzung von Fluenzdetektoren und Spaltproduk- ten zur Abbrandbestimmung	29
Abb. 2.6 Gammaspektrum von Edelstahl 4541 X10CrNiTi 18 9	33
Abb. 2.7 Kugelbrennelement des THTR	34
Abb. 3.1 Relatives Ansprechvermögen als Funktion der γ -Energie für einen $25 \text{ cm}^3 \text{ Ge(Li)-Detektor}$	37
Abb. 3.2 Spaltproduktspektren für verschiedene Zeitpunkte nach Bestrahlungsende ($3'' \times 3'' \text{ NaJ(Tl)}$)	38
Abb. 3.3 Spaltproduktspektrum 100 Stunden nach Bestrahlungsende, aufgenommen mit NaJ(Tl)-Kristall und mit Ge(Li)-Detektor	39

Abb. 3.4	Spaltproduktspektren, aufgenommen zu verschiedenen Zeitpunkten nach Bestrahlungsende (Ge(Li)-Detektor, 25 cm ³)	41
Abb. 3.5	Bereich von 1,0 bis 1,5 MeV im Spaltproduktspektrum zu verschiedenen Zeiten nach Bestrahlungsende a) 25 Stunden, b) 100 Stunden, c) 240 Stunden, d) 8 Monate, Abbrand 54 %	42
Abb. 3.6	Ausschnitt des Spektrums einer hochabgebrannten Brennstoffprobe, aufgenommen mit einem Compton-Summen-Spektrometer [54]	44
Abb. 3.7	Gegenüberstellung der Fluenzisotope Co ⁶⁰ , Zn ⁶⁵ und Ag ^{110m} im Vergleich zum Spaltproduktspektrum ($t_w = 100$ h)	45
Abb. 3.8	Normiertes Aktivitätsverhältnis Co ⁶⁰ /La ¹⁴⁰ als Funktion der Bestrahlungszeit	48
Abb. 3.9	Normiertes Aktivitätsverhältnis Co ⁶⁰ /La ¹⁴⁰ als Funktion der Kühlzeit	49
Abb. 4.1	Ausschnitt aus dem Spaltproduktspektrum mit Kobaltbeimischung zu verschiedenen Zeiten nach Bestrahlungsende	56
Abb. 4.2	Ausschnitt aus dem Spaltproduktspektrum bei verschiedener Kobaltbeimischung und verschiedenem Abbrandzustand	57

	<u>Seite</u>
Abb. 4.3 Einstellung des Einkanalanalysators auf die 1.333 MeV Linie des Co^{60}	59
Abb. 4.4 Auswirkung des Fluenzfehlers auf den Abbrandfehler in Abhängigkeit vom Abbrandwert	62
Abb. 5.1 Abhängigkeit der Co^{59} -Beimischung vom Abbrand (bezogen auf die bei der Spal- tung entstandene Cs^{137} -Aktivität)	68
Abb. 5.2 Abbrandmeßvorrichtung mit 3 Nachweis- kanälen	73
Abb. 5.3 Auswirkungen eines 7 mm dicken Bleiab- sorbers auf das Ansprechvermögen eines Ge(Li) -Detektors	74
Abb. 5.4 Fluenzfehler als Funktion der Abkling- zeit bei mäanderförmigem Flußdichtever- lauf zwischen ϕ_0 und 0. t_E : Einsatzzeit	81
Abb. 5.5 Fluenzfehler als Funktion der Abkling- zeit bei mäanderförmigem Flußdichtever- lauf zwischen 0 und ϕ_0 . t_E : Einsatzzeit	82
Abb. 5.6 Fluenzfehler in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ bei sägezahnförmigem Flußdichtever- lauf zwischen 0 und ϕ_0 . t_E : Einsatzzeit	83
Abb. 5.7 Fluenzfehler in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ bei sägezahnförmigem Flußdichtever- lauf zwischen $0.4 \phi_0$ und ϕ_0 . t_E : Einsatzzeit	84

	<u>Seite</u>
Abb. 5.8 Fluenzfehler als Funktion der Core- durchlaufzeit bei verschiedenen Last- faktoren und variabler Anzahl der Durchläufe	85
Abb. 5.9 Fluenzfehler als Funktion der Anzahl der Durchläufe	86

Verzeichnis der Tabellen

Tabelle 2.1	25
Tabelle 2.2	29
Tabelle 4.1	55
Tabelle 4.2	60
Tabelle 4.3	61
Tabelle 5.1	70

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wird eine Methode zur zerstörungsfreien Bestimmung des Abbrandzustandes von Reaktor-Brennelementen beschrieben.

Durch gammaspektroskopische Analyse wird neben den Spaltprodukten die Aktivität eines dem Brennstoff beigemischten und durch Neutroneneinfang aktivierten Isotops gemessen, das selbst nicht Spaltprodukt ist, einen hinreichend großen Aktivierungsquerschnitt und eine genügend lange Halbwertszeit besitzt. Die Trennung des aktivierten Isotops vom Brennstoff und den gebildeten Spaltprodukten ist nach der Bestrahlung nicht erforderlich. Aus der Aktivität läßt sich die Fluenz ermitteln, der das Isotop gleichzeitig mit dem Brennstoff ausgesetzt war. Die Fluenz gibt ein exaktes Maß für den Abbrand.

Die für die Abbrandbestimmung benutzbaren Isotope werden beschrieben, die an sie gestellten Anforderungen spezifiziert und Möglichkeiten für die Beimischung zu verschiedenen Brennelementtypen erläutert.

Mit Hilfe eines hochauflösenden Gammaskpektrometers mit Ge(Li)-Detektor wurden das Spaltproduktspektrum und insbesondere der Bereich zwischen etwa 1,0 MeV und 1,4 MeV untersucht, der nach 3 bis 4 Tagen Kühlzeit nach dem Ende der Bestrahlung nahezu linienfrei ist. Oberhalb 1,4 MeV schließt sich ein Energiebereich mit wenigen Linien von Spaltproduktaktivitäten an. In diesen Spektrumsbereichen kann die Aktivität von Fluenzisotopen störungsfrei quantitativ nachgewiesen werden.

Die Menge der Beimischung richtet sich nach der Bestrahlungsdauer, der Kühlzeit zwischen Bestrahlungsende und Messung, der Meßzeit, der Reaktivitätsabsorption und der durch das Fluenzisotop erzeugten zusätzlichen langlebigen Aktivität im Brennstoff.

An bestrahlten beschichteten Partikeln aus Uran mit hoher Anreicherung an U^{235} wurden bei Abbränden zwischen 0,6 % und 2,8 % etwa 130 Stunden nach Bestrahlungsende vergleichende Abbrandmessungen durchgeführt, die innerhalb einer Fehler-schranke Ergebnisse lieferten, die die Brauchbarkeit der Methode beweisen. Als Beimischung wurde Co^{59} in einem Gewichtsverhältnis zum Spaltstoffeinsatz von 5 % benutzt. Die Hauptfehlerquellen waren apparative Ungenauigkeiten und meß-technische Abweichungen bei der Dosierung der Beimischung. Bei steigendem Abbrand und wachsender Kühlzeit nach Bestrahlungsende nimmt die Genauigkeit der Messung vor allem wegen des Untergrundverhaltens stetig zu.

Für die spezielle Anwendung auf kugelförmige Brennelemente des THTR werden Möglichkeiten für die Abbrandbestimmung 4 Tage nach Bestrahlungsende mit einer Meßzeit von etwa 10 s diskutiert.

Zur Überprüfung der Eignung der Methode bei langen Einsatzzeiten des Brennstoffs ohne irgendwelche Angaben über Bestrahlungszeiten, Kühlzeiten, Neutronenflußdichten, betriebliche Fahrprogramme und Einsatzorte der Brennelemente wurde der Fehler der Fluenzbestimmung errechnet, der sich bei willkürlicher Annahme einer Neutronenflußdichtekonstanz über die gesamte Einsatzzeit ergibt. Die ermittelten Fluenzfehler erreichen bei Benutzung von Co^{59} mit Einsatzzeiten bis zu 2000 Tagen und bei Berücksichtigung der verschiedensten Betriebsabläufe und Brennelementgeschichten Werte unter 2 %, die sich stets zu einem geringeren Anteil auf den Fehler der Abbrandbestimmung auswirken.

Abschließend werden weitergehende Anwendungsmöglichkeiten sowie Vorschläge für die technische Durchführung des Verfahrens beschrieben.

Einleitung

Die genaue Bestimmung des Abbrandzustandes der einzelnen Brennelemente eines Kernreaktors ist zur Erzielung einer wirtschaftlichen Brennstoffausnutzung und zum Erreichen günstiger Reaktivitätsverhältnisse von großer Wichtigkeit. Es wird eine größtmögliche Genauigkeit angestrebt, da ein zu weitgehender Abbrand die Reaktivität des Reaktors ungünstig beeinflusst, eine zu frühe Entnahme der Brennelemente die Brennstoffkosten unnötig erhöht.

Bei Forschungsreaktoren, die mit kleinen Brennstoffeinsätzen mit Anreicherungen des Spaltstoffs bis zu 90 % betrieben werden, sind gute Abbrandbestimmungen für die optimale Gestaltung der Bestrahlungsperioden unerlässlich. Leistungsreaktoren können nur wirtschaftlich betrieben werden bei hinreichend genauer Kenntnis des Abbrandzustandes der einzelnen Brennelemente. Daraus lassen sich günstige Umsetz- oder Umwälzverfahren für den Brennstoff entwickeln und flache Flußdichteverteilungen über den Reaktorquerschnitt bei gleichzeitiger Vermeidung von örtlichen Leistungsspitzen erreichen. Reaktoren mit kontinuierlicher Brennstoffbeschickung, wie z.B. Kugelhaufenreaktoren, benötigen eine genaue Aussage über den Abbrandzustand der einzelnen Kugeln, damit alle Vorzüge dieses Brennelementtyps ausgenutzt werden können und damit ein Aufbereiten des erbrüteten Spaltstoffs mit maximaler Ausbeute durchgeführt werden kann.

Der Begriff "Abbrand" hat je nach dem betrachteten Reaktortyp oder dem benutzten Brennstoff eine unterschiedliche Bedeutung.

Die Einheit "fifa" (fissions per initial fissionable atoms) gibt das Verhältnis der Anzahl der Spaltungen im Brennstoff durch Neutroneneinfang zur Anzahl der zu Beginn der Bestrahlung im Brennstoff vorhandenen spaltbaren Kerne an.

Bei Berücksichtigung der Konversion von nichtspaltbarem Brutmaterial im Spaltstoff wird der Abbrand auch durch das Verhältnis der Anzahl der Spaltungen zur Anzahl der ursprünglich vorhandenen Schwermetallkerne in der Einheit "fima" (fissions per initial metal atoms) angegeben.

Als Abbrand in % wird das Verhältnis der Brennstoffmenge, die durch Spaltung und durch Neutroneneinfang ohne nachfolgende Spaltung verlorengegangen ist, zur Menge des ursprünglichen Brennstoffeinsatzes verstanden und durch den Ausdruck

$$X(t) = \frac{M_o - M(t)}{M_o} \cdot 100 [\%] \quad (1)$$

dargestellt. Im folgenden wird unter Abbrand stets die letztgenannte Darstellung verstanden, sofern im Text keine anderslautende Erklärung angegeben ist.

Wachsende Bedeutung wird der Bestimmung des Restgehaltes an Brennstoff und des Inhalts an erbrütetem Spaltstoff in abgebrannten Brennelementen in neuester Zeit beigemessen, da einer automatischen Spaltflußüberwachung in vielen Ländern der Vorzug gegenüber Inspektionen durch Kontrolleure internationaler Organisationen gegeben wird. Diese Anwendungsmöglichkeiten sind vor allem seit der Existenz des Vertrages zur Nichtweitergabe von Atomwaffen interessant geworden und werden in wachsendem Umfange untersucht [1 - 3].

1. Bekannte Verfahren

Die Forderung nach Bestimmung des Abbrandes ist schon einige Jahre alt, so daß in der Vergangenheit bereits eine umfangreiche Anzahl von Methoden zur Abbrandbestimmung entwickelt wurde. Hierbei sind zwei Arten deutlich zu unterscheiden: die Bestimmung des Abbrandes nach Zerstörung des Brennelementes und die zerstörungsfreien Methoden.

1.1. Zerstörende Verfahren

Die erstgenannte Art der Abbrandbestimmung erfordert stets die Zerstörung des Brennelementes auf mechanischem und chemischem Wege und liefert die Abbrandinformation durch Bestimmung des Restes an spaltbarem Material oder durch Abtrennung von radioaktiven bzw. nicht radioaktiven Spaltprodukten und Bestimmung ihrer Menge. Aus diesen Informationen läßt sich dann bei Kenntnis der Spaltausbeute sowie gegebenenfalls verschiedener Parameter, wie z.B. Standzeit im Reaktor, Abkühlzeit, usw., auf den Spaltstoffverbrauch schließen. Obwohl diese Methoden die größere Genauigkeit aufweisen, bieten sie nicht die Möglichkeit, aus den mit ihnen gewonnenen Ergebnissen Entscheidungen herzuleiten. Sie erlauben es lediglich, den Abbrand des Brennstoffes zu ermitteln, nachdem bereits darüber entschieden worden ist, daß er für eine Weiterverwendung nicht mehr infrage kommt. Zur Steigerung der Genauigkeit werden auf dem Gebiet der zerstörenden Abbrandbestimmung in Amerika und in Europa umfangreiche Versuchsprogramme durchgeführt [4 - 12].

1.2. Zerstörungsfreie Verfahren

Weitaus interessanter sind die Methoden zur zerstörungsfreien Bestimmung des Abbrandzustandes, da diese das Brennelement unbeschädigt lassen und die Möglichkeit bieten, aus den gewonnenen Ergebnissen Schlüsse auf die Art der Weiterverwendung des Brennelementes zu ziehen. Diese Methoden lassen sich beim gleichen Element mehrmals nacheinander anwenden und tragen damit zur bestmöglichen Ausnutzung und Benutzung des Brennstoffes bei. Daneben wird bei den zerstörungsfreien Verfahren bei weitem nicht der Aufwand benötigt, den zerstörende Abbrandmethoden erfordern.

Bei den zerstörungsfreien Verfahren zur Bestimmung des Abbrandes wird zwischen neutronenphysikalischen, reaktorkinetischen und spektroskopischen Methoden unterschieden.

1.2.1. Neutronenphysikalische Methoden

Unter den neutronenphysikalischen Methoden bieten sich Verfahren an, die aus der Menge der emittierten verzögerten Neutronen auf den momentanen Spaltstoffinhalt schließen lassen [13, 14]. In ähnlicher Weise kann durch Bestrahlen von Kernbrennstoff mit einer gepulsten Neutronenquelle eine quantitative Information über den Inhalt an Spaltstoff gewonnen werden. Bei Benutzung von gepulsten Quellen von Neutronen sehr unterschiedlicher Energie kann die Menge an U^{235} und Pu^{239} nebeneinander bestimmt werden [15, 16].

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung des Abbrandes bietet die Neutronen-Transmissionsmessung. Ein Neutronenstrahl wird durch die zu untersuchenden Brennelemente geleitet. Eine unterschiedliche Menge spaltbaren Materials verursacht durch die Neutronenabsorption eine verschieden starke Schwächung der Neutronenintensität. Damit läßt sich ein Meßeffect er-

zielen, der auf die Menge spaltbaren Materials zu schließen erlaubt [17]. Die Meßeffekte sind jedoch sehr klein und können leicht durch Störungen und Untergrundstrahlung verwaschen werden, so daß keine große Genauigkeit erreichbar ist. Dadurch wird ihre Verwendbarkeit stark vermindert.

Im Zuge der Entwicklung automatischer Spaltflußkontrollen wurde ein Verfahren untersucht, das aus den beim Neutroneneinfang ohne nachfolgende Spaltung im U^{235} bzw. Pu^{239} entstehenden γ -Quanten hoher Energie den Spaltstoffgehalt bestimmt [18]. Für unbestrahlten Brennstoff konnte die Anwendbarkeit dieses Verfahrens gezeigt werden. Bei bestrahltem Brennstoff sind jedoch zusätzliche Messungen und Annahmen erforderlich, die auch für diesen Fall eine erfolgversprechende Lösung in Aussicht stellen.

1.2.2. Reaktorphysikalische Methoden

Mit den reaktorphysikalischen Methoden kann aus dem Einfluß auf die Statik oder Kinetik des Reaktorkerns die Spaltstoffmenge ermittelt werden. Unter gewissen Voraussetzungen ist es möglich, aus dem Reaktivitätsgewinn die Menge des dem Reaktor bei einem Brennelementtausch zugeladenen Brennstoffes zu bestimmen [19, 20]. Hierzu ist jedoch die genaue Kenntnis vieler Reaktorparameter erforderlich, die durch ihre eigene Ungenauigkeit die eigentliche Abbrandmessung recht fehlerhaft werden lassen. Neben dieser statischen Methode ist eine kinetische zu erwähnen, die die Tatsache ausnutzt, daß das Verhalten von Reaktoren mit kleiner kritischer Masse äußerst empfindlich selbst durch kleine Mengen Spaltstoff beeinflußt wird. Die Einflußfunktion, die die Flußstörung beim Durchlaufen einer Brennstoffprobe durch den Reaktor beschreibt, kann zur Ermittlung des Brennstoffinhalts der Probe verwandt werden [21, 22]. Dieses Verfahren wurde für die

Abbrandbestimmung bei Kugelhaufenreaktoren entwickelt. Neben der Tatsache, daß naturgemäß nur kleine Brennstoffproben für die Messung herangezogen werden können, ist eine Unterscheidung von verschiedenen Spaltstoffen nicht möglich und kann nur mit großem Aufwand recht unvollkommen gelöst werden. Abgesehen davon ist jedoch eine brauchbare Bestimmung von kleinen Mengen eines einzelnen Spaltstoffes sehr schnell zu erzielen.

1.2.3. Spektroskopische Methoden

Bei den spektroskopischen Methoden sollen nur die gammaspektroskopischen erwähnt werden, da normalerweise die Brennelementumhüllung schon genügt, um die β -Strahlen am Durchtritt zu hindern und so einer Messung zu entziehen.

Die gammaspektroskopischen Methoden sind nach integralen und differentiellen Verfahren zu unterscheiden.

Als Beispiel einer integralen Methode ist die Abbrandbestimmung durch Nachbestrahlung abgebrannter Brennstoffproben zu nennen [23]. Durch die erneute kurzzeitige Bestrahlung werden vorwiegend Spaltproduktaktivitäten mit kurzer Halbwertszeit unter definierten Bestrahlungsverhältnissen erzeugt. Die neu entstandenen Spaltproduktaktivitäten sind proportional dem Neutronenfluß und der vorhandenen Spaltstoffmenge. Die langlebigen Spaltprodukte werden durch die im allgemeinen kurze Nachbestrahlungszeit in ihrer Aktivität nicht nennenswert vermehrt. Gegenüber einer ebenfalls nachbestrahlten Vergleichsprobe mit bekanntem Spaltstoffinhalt wird aus den integralen Messungen der kurzlebigen Aktivitäten der Spaltstoffinhalt der Meßprobe ermittelt. Die Eliminierung der langlebigen Aktivitäten wird durch zwei Messungen zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Bestrahlung und Differenzbildung der Meßergebnisse erreicht.

Mit dieser Methode können nur kleine Brennstoffproben ausgemessen werden, da bei Nachbestrahlung im Reflektor eines Reaktors der Reaktivitätseinfluß in Grenzen bleiben muß. Zur Nachbestrahlung mit Hilfe einer Neutronenquelle reichen die erzielbaren Neutronenintensitäten in den meisten Fällen nicht aus. Ebenso wie alle Verfahren, die den Restgehalt an Brennstoff direkt bestimmen, bietet sich auch bei dieser Methode keine Möglichkeit, zwischen verschiedenen Spaltstoffen, etwa verbleibendem U^{235} und aus Th^{232} erbrütetem U^{233} , zu unterscheiden. Diese zusätzliche Forderung ließe sich jedoch durch mehrmalige Nachbestrahlung in verschiedenen Neutronenspektren erfüllen, was einige Vorteile dieser Methode, wie z.B. Schnelligkeit der Bestimmung und Einfachheit der Auswertung, zunichte macht. In günstigen Fällen kann die Messung der Spaltstoffmenge mit geringem Zeitaufwand und vor allem kurz nach der Entnahme des Brennstoffes aus dem Reaktor durchgeführt werden. Die Apparatur zur integralen Messung ist wenig aufwendig, jedoch werden durch die umfangreiche Nachbestrahlungseinrichtung die hierdurch gegebenen Vorteile wieder aufgehoben.

Auf dem Gebiet der differentiellen Gammaspektroskopie sind in den letzten Jahren große Anstrengungen unternommen worden. Gerade durch die Verwendung von Litium-gedrifteten Germanium-Halbleiterdetektoren ($Ge(Li)$) wurde die Entwicklung wegen der mit ihnen erreichten großen Energieauflösung und der damit verbundenen Fähigkeit, einzelne nahe beieinander liegende Spaltproduktlinien spektroskopisch zu trennen, erheblich gefördert. $Ge(Li)$ -Detektoren garantieren bei Verwendung von Exemplaren mit großem aktivem Volumen ein hohes Ansprechvermögen in Verbindung mit einem guten Peak/Compton-Verhältnis. Wegen der extrem scharfen Linien lassen sich Photopeaks bei weitem besser aus einem Untergrund herausheben, als dies bei den bisher benutzten $NaJ(Tl)$ -Detektoren mit geringer Auflösung möglich ist. Dadurch wird das gegenüber $NaJ(Tl)$ mehr als um eine Größenordnung kleinere Ansprechvermögen weitgehend ausgeglichen. Die Verwendung der $Ge(Li)$ -Detektoren in

Verbindung mit einer Anti-Compton-Anordnung gestattet es, den störenden Untergrund noch wirkungsvoller zu unterdrücken.

Aus der Integration der in der Photolinie eines oder mehrerer Spaltprodukte enthaltenen Ereignisse läßt sich bei Kenntnis ihrer Spaltausbeute, relativen Linienausbeuten und Halbwertszeiten die Anzahl der Spaltungen im Brennstoff bestimmen und damit die Angabe des Abbrandes erzielen [24 - 35]. Die Abbrandinformation sollte ohne Hinweise über die Bestrahlungs- und Abkühlzeiten erreichbar sein, die je nach Reaktor- oder Brennstofftyp ohnehin nur recht ungenau oder überhaupt nicht bekannt sind.

Für die Eignung als Abbrandindikator müssen vom betrachteten Spaltprodukt die folgenden Bedingungen möglichst vollzählig erfüllt werden:

1. Die Halbwertszeit des zu untersuchenden Spaltproduktes muß erheblich größer sein als die Verweilzeit des Brennstoffes im Reaktor.
2. Der Einfangquerschnitt für Neutronen des gebildeten Spaltproduktes, das für eine Untersuchung vorgesehen ist, muß klein sein, damit nicht während der Bestrahlungszeit gebildete Spaltprodukte durch Aufaktivierung verloren gehen.
3. Die Spaltausbeute sowie die Zerfallswahrscheinlichkeit über Gammazerfall muß so groß sein, daß eine hinreichende Zählrate über dem Untergrund der restlichen Spaltprodukte zu erwarten ist.
4. Die Fotolinie des Spaltproduktes soll nicht durch andere Linien in unmittelbarer Umgebung gestört werden.

Die geforderten Bedingungen werden von den einzelnen Spaltprodukten stets nur zum Teil erfüllt. Von verschiedenen Verfassern wurde die Verwendbarkeit einzelner Nuklide untersucht, die jedoch alle nur mit Einschränkungen oder in speziellen Fällen angewandt werden können.

Einige Spaltproduktpaare, direkt entstehende Mutterkerne und durch radioaktiven Zerfall daraus sich bildende Tochterkerne, wie z.B. Ba^{140} - La^{140} (12,8 d; 40,2 h) sowie Zr^{95} - Nb^{95} (65,5 d; 35,5 d) finden auf Grund ihrer kurzen Halbwertszeiten nur bei kurzzeitigen Bestrahlungen zur Abbrandbestimmung Anwendung, wenn gleichzeitig die Bestrahlungsgeschichte, Bestrahlungszeiten und Abklingzeiten, bekannt sind. Ce^{144} - Pr^{144} (285 d; 17 m) und Ru^{106} - Rh^{106} (1 a; 30 s) können bei mittleren Bestrahlungszeiten als Abbrandindikatoren gute Ergebnisse liefern, wobei Ru^{106} - Rh^{106} wegen der für U^{235} und Pu^{239} stark unterschiedlichen Spaltausbeuten der relative Anteil von Spaltungen in den verschiedenen Spaltstoffen zu bestimmen gestattet, wenn mit Hilfe eines anderen Nuklids der Gesamtbrand ermittelt wird.

Das Spaltprodukt Cs^{133} wird durch Neutroneneinfang zu Cs^{134} mit einer Halbwertszeit von 2,3 a aufaktiviert. Cs^{134} kann mit Vorteil zur Abbrandbestimmung verwandt werden, jedoch sind verschiedene Angaben über die herrschenden Neutronenflußdichten erforderlich. Nachteilig ist die bei hohen Temperaturen auftretende starke Diffusion des Caesiums im Brennstoff, was besonders bei Hochtemperaturbrennstoffen die Abbrandbestimmung fehlerhaft werden läßt.

Der gleiche Nachteil trifft für die Abbrandbestimmung durch Cs^{137} zu, das mit einer günstigen Halbwertszeit von 30,0 a bei nennenswerter Spaltausbeute entsteht. Wegen der langen Halbwertszeit ist die Kenntnis der Bestrahlungsgeschichte nicht erforderlich. Die Photolinie von 661,6 keV wird nach Bestrahlungsende sehr stark von der weit intensiveren Te^{132} -

J^{132} -Linie von 667,8 keV mit einer Halbwertszeit von 78 Stunden gestört. Dadurch ist selbst bei Verwendung hoch auflösender Spektrometer mit Ge(Li)-Detektoren eine Abklingzeit von etwa 2 bis 3 Monaten erforderlich, bis eine Messung mit hinreichender Genauigkeit durchführbar ist.

In allen oben angeführten Arbeiten wird die Bestimmung des Abbrandes zwischen einem Monat und einigen Jahren nach dem Ende der Bestrahlung vorgenommen und erfordert teilweise zur Erreichung einer guten Abbrandangabe die Kenntnis der Bestrahlungsgeschichte sowie lange Meßzeiten. Lediglich eine Arbeit [26] beschreibt eine Abbrandmessung 10 Tage nach Bestrahlungsende. Die Wartezeit errechnet sich aus der Energiedifferenz zwischen der Cs^{137} -Linie und der $Te^{132}-J^{132}$ -Linie, die die Auswertung der Cs^{137} -Aktivität stört. Bei Verwendung der neuerdings exakt ausgemessenen und in der Literatur angegebenen Energiewerte der beiden Linien [36] ergeben sich auch bei dieser Methode Wartezeiten in dem von den anderen Autoren angegebenen Bereich.

2. Abbrandbestimmung durch Zugabe aktivierbarer Isotope

2.1. Erläuterung der Methode

Die oben aufgeführten, bekannten Methoden der zerstörungsfreien Abbrandbestimmung weisen größtenteils Nachteile auf, die die Genauigkeit der Bestimmung herabsetzen, oder durch Anforderungen an Parameter, Brennstoffzusammensetzung, Kenntnis der Stand- oder Kühlzeiten, die Brauchbarkeit der Verfahren auf bestimmte Bereiche begrenzen.

Ihre Anwendbarkeit verlangt die Einhaltung von mehr oder minder großen Zeitabständen nach dem Ende der Bestrahlung. Durch diese Kühlzeiten liefern sie die Abbrandinformation erst verspätet und vergrößern damit das Brennstoffinventar der Reaktoranlage.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, ein Verfahren aufzuzeigen, das einige der genannten Anforderungen nicht stellt und dadurch in einem weiteren Umfange für eine Abbrandbestimmung brauchbar ist. Das beschriebene Verfahren gehört zur Gruppe der Methoden, die mit Hilfe der differentiellen Gammaskopie den Abbrandzustand, d.h. den bereits gespaltenen Anteil des Brennstoffs, bestimmen.

Die im Abschnitt 1.2.3. aufgeführte Einzeldarstellung der Spaltprodukte, die als Abbrandindikatoren benutzt werden können, zeigt, daß alle prinzipiell möglichen Nuklide entweder eine zu geringe Spaltausbeute, ungünstige Energien der emittierten Strahlung in Bezug auf Nachbarlinien oder zu kleine Halbwertszeiten haben. Keines erfüllt die gestellten Forderungen vollständig.

Bei genauer Untersuchung von Spaltproduktspektren, die mit Hilfe eines Ge(Li)-Detektors aufgenommen wurden, zeigt sich, daß im Energiebereich zwischen etwa 1,0 MeV und 1,4 MeV bei relativ kurzer Kühlzeit nach Ende der Bestrahlung keine

Spaltproduktlinien mit nennenswerter Intensität mehr auftreten [37]. Lediglich der Comptonuntergrund höherenergetischer Gammazerfälle sowie sehr schwache Linien sind in diesem Bereich feststellbar. Dieser Zustand wird etwa 3 bis 4 Tage nach dem Ende der Bestrahlung erreicht.

Die Beimischung eines Isotops, das selbst nicht Spaltprodukt ist noch aus diesen durch Neutroneneinfang oder Zerfall entsteht, mit hinreichend großem Aktivierungsquerschnitt, genügend langer Halbwertszeit und einer Energie der ausgesandten γ -Strahlung im Bereich zwischen 1,0 und 1,4 MeV zum Brennstoff, wird nach der Bestrahlung eine γ -Linie im Spaltproduktspektrum liefern, die aus ihrer Intensität die über die Standzeit integrierte Neutronenflußdichte bzw. die Neutronenfluenz zu bestimmen gestattet. Der Wert der Fluenz liefert unter Berücksichtigung der nuklearen Daten des beigemischten Isotops und des Spaltstoffs den Anteil an gespaltenem Brennstoff, d.h. den Abbrand. Die Messung kann zu einem Zeitpunkt vorgenommen werden, zu dem sich das linienfreie Fenster im Spaltproduktspektrum gebildet hat, ist also bereits 3 bis 4 Tage nach Bestrahlungsende möglich.

Als Beimischung sind Isotope mit Einfangquerschnitten für thermische, epithermische oder schnelle Neutronen zu benutzen. Die Auswahl richtet sich nach der Art des Reaktors, in den der auf Abbrand zu untersuchende Brennstoff eingesetzt werden soll, bzw. welche Brennstoff-Brutstoff-Kombinationen Verwendung finden.

2.2. Anforderung an benutzte Isotope

Die Abbrandbestimmung durch Beimischung aktivierbarer Isotope stellt im wesentlichen eine Fluenzbestimmung dar. Das bemerkenswert Neue an dem genannten Verfahren ist, daß der Fluenzdetektor nicht nach der Bestrahlung in Gestalt einer Sonde

aus dem Brennstoff entfernt werden muß, um getrennt vom Spaltstoff gemessen zu werden [38, 39]. Bei dem beschriebenen Verfahren wird das beigemischte Fluenzisotop gleichzeitig mit dem Brennstoff durch Bestrahlung aktiviert und gleichzeitig neben den Spaltprodukten gemessen. Da Spaltproduktaktivitäten in der Nachbarschaft der Gammalinien des gewählten Fluenzisotops nicht auftreten, ist eine Störung der Messung ausgeschlossen und damit eine Abtrennung unnötig.

Die einfache Beimischung des aktivierbaren Isotops vermeidet alle Schwierigkeiten, die mit der Anbringung der Fluenzdetektoren im Hinblick auf eine notwendige spätere Trennung vom Brennstoff verbunden sind. Daneben werden weitgehend Fehler eliminiert, die durch die unterschiedliche Neutronenflußdichte im Brennstoff und am Ort der getrennt angebrachten Fluenzdetektoren in Form von Sonden, Drähten oder Folien entstehen.

Bei der Auswahl der beigemischten Isotope sind zuerst alle Forderungen zu erfüllen, die an einen guten Fluenzdetektor gestellt werden. Dazu gehört, daß die Halbwertszeit des aktivierten Isotops in einem vernünftigen Verhältnis zur Einsatzzeit im Reaktor steht. Im angestrebten Fall soll die Halbwertszeit erheblich größer als die Bestrahlungsdauer sein, damit die Aktivierung weit vom Sättigungswert entfernt bleibt, aus dem keine Information über die Fluenz gewonnen werden kann. Da die Abbrandbestimmung auch nach möglichst langen Bestrahlungszeiten ausgeführt werden soll, erscheint es sinnvoll, äußerstenfalls eine Halbwertszeit zuzulassen, die zumindest genau so groß wie die Bestrahlungszeit ist. Kann diese Forderung nicht erfüllt werden, so muß mit größeren Fehlern bei der Fluenzbestimmung gerechnet werden. Daneben ist es günstig, daß das zu aktivierende Nuklid einen großen relativen Anteil am natürlichen Isotopengemisch besitzt, um die Menge der Beimischung klein zu halten und eine Störung durch Aktivierung anderer Isotope des gleichen Elementes zu verhindern.

Der Spektralbereich, in dem die Aktivierung des Fluenzisotops auftritt, soll den Spektralbereich überdecken, in dem die Spaltung des im Brennelement vorhandenen Spaltstoffes stattfindet, oder ihm durch exakt bestimmbare Kopplungsfaktoren angepaßt werden können.

Die durch Aktivierung im Neutronenfluß entstandenen radioaktiven Isotope der Beimischung sollen eine γ -Zerfallsenergie im linienfreien Bereich zwischen 1,0 und 1,4 MeV besitzen und möglichst durch Neutronen nicht weiter aufaktiviert, d.h. abgebrannt werden, damit die Fluenzbestimmung nicht verfälscht wird. Es ist wünschenswert, daß eine Aktivität entsteht, die streng linear vom Zeitintegral über die Neutronenflußdichte des interessierenden Spektralbereiches abhängt.

Aus der Intensität der Photolinie des aktivierten beigemischten Isotops kann unter Berücksichtigung der nuklearen Daten eine Information über die Fluenz, d.h. die zeitlich integrierte Neutronenflußdichte, die das Isotop gleichzeitig mit dem Brennstoff empfangen hat, gewonnen werden. Mit der Fluenz ergibt sich nach der Gleichung

$$\frac{M_0 - M(t)}{M_0} = 1 - e^{-\sigma_f \int_0^t \Phi(\tau) d\tau} \quad (2)$$

der Abbrand durch Spaltung als Anteil der Anfangsbrennstoffmenge. Wird für den Spaltquerschnitt σ_f der Gesamtabsorptionsquerschnitt σ_a benutzt, folgt als Ergebnis der Gleichung (2) der Anteil der Spaltstoffatome, der durch Spaltung und durch Konversion durch Neutroneneinfang ohne nachfolgende Spaltung verloren gegangen ist. Bezeichnet man den Abbrand mit X und das Flußdichteintegral mit I, so folgt für den Abbrand als Funktion der Fluenz der einfache Ausdruck

$$X(t) = 1 - \exp(-\sigma_a \cdot I) \quad (3)$$

Der Verlauf dieser Funktion ist für den Fluenzbereich von 10^{20} n/cm² bis 10^{22} n/cm² in Abb. 2.1 dargestellt.

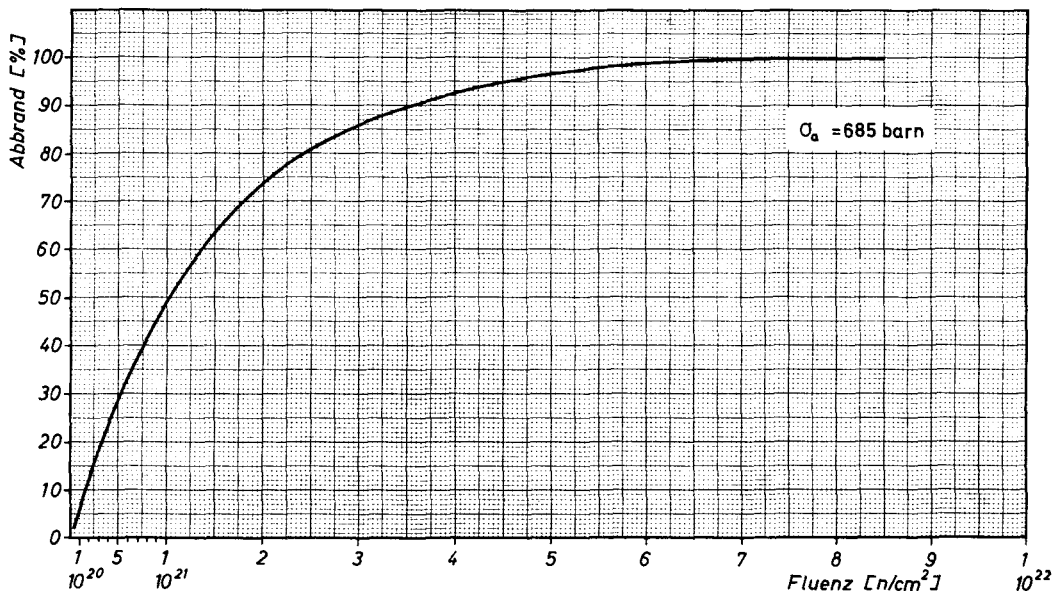


Abb. 2.1 Abhängigkeit des Gesamtabbrandes von der Neutronenfluenz (10^{20} n/cm² $\leq \phi \cdot t \leq 10^{22}$ n/cm²).

Neben den Bedingungen, die das Isotop als guter Fluenzdetektor erfüllen muß, treten noch Forderungen, die von der Brennstoff- und Reaktorseite erhoben werden. Das beigegebene Material muß rein oder in einer chemischen Verbindung mit dem Brennstoff oder dessen engster Umhüllung mischbar und mit deren Bestandteilen verträglich sein. Der normale Gang der Herstellung und der Aufarbeitung ist nicht zu stören, noch darf bei Verwendung in Hochtemperaturreaktoren eine durch ein Temperaturgefälle verursachte Diffusion aus dem Brennstoff auftreten. Gegebenenfalls ist das Herausdiffundieren durch eine entsprechende Einschließung des Isotops zu verhindern.

Die Menge des beigegebenen Isotops und sein Absorptionsquerschnitt sollen derart begrenzt sein, daß zwar nach der Aktivierung die Linie über dem Untergrund gut nachweisbar

ist, auf der anderen Seite jedoch keine zu große Reaktivitätsabsorption im Reaktor entsteht.

Die Forderung nach geringer Reaktivitätsstörung steht der Forderung nach hohem Einfangquerschnitt entgegen. Zwischen beiden wird ein optimaler Wert zu ermitteln sein, der den Meßbedingungen genügt und die durch Reaktivitätsverluste verursachte Vergrößerung des Brennstoffeinsatzes in den Grenzen hält, die von der Kostenseite tolerierbar sind.

2.3. Einzeldarstellung brauchbarer Isotope

Von den zahlreichen bekannten Isotopen bleiben wegen der umfangreichen Anforderungen, die gleichzeitig an sie gestellt werden, nur wenige übrig, die als Abbrandmonitore verwandt werden können.

Für die Aktivierung in einem Neutronenspektrum mit überwiegendem Anteil im thermischen Bereich stehen die Isotope zur Verfügung, die in Tabelle 2.1 aufgeführt sind.

Es sind die Einfangquerschnitte für thermische Neutronen für eine Neutronengeschwindigkeit von 2200 cm/s, die Lage der Photolinien, die Halbwertszeit des aktivierten Isotops sowie die Verbindungen aufgeführt, die die größte Temperaturbeständigkeit besitzen.

Von diesen scheiden K^{40} und Nb^{94} wegen ihrer extrem großen Halbwertszeiten aus, da hierdurch eine Menge der Beimischung erforderlich wird, die den Spaltstoffeinsatz um Größenordnungen übersteigt.

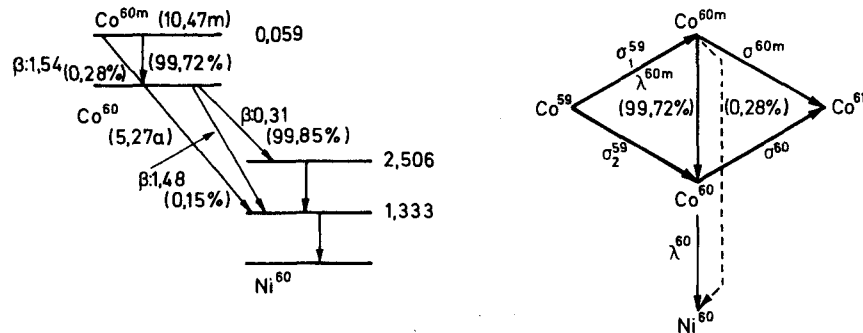
In den Abbildungen 2.2, 2.3 und 2.4 sind für die am besten zur Verwendung als Fluenzdetektor geeigneten Isotope Co^{59} , Zn^{64} und Ag^{109} die Zerfalls und Entstehungsschemata, die

Tabelle 2.1

Isotop für Bei- mischung	Isotop für Mes- sung	Einfang- quer- schnitt [barn]	E_{γ} [MeV]	$T_{1/2}$	Max. Temp.- Best. in der Verbindung
K^{39}	K^{40}	$\sigma_R = 3$	1.46	$1,25 \cdot 10^9 a$	K_3PO_4 1340°C
Co^{59}	Co^{60}	$\sigma_{th}=37.4$	1,173 1,333	5.27 a	Co_2C 2000°C $Co(AlO_2)_2$ 1970°C
Zn^{64}	Zn^{65}	$\sigma_{th}= 0.47$	1.1185	246.4 d	ZnO 1975°C ZnS 2122°C
Nb^{93}	Nb^{94}	$\sigma_{th}= 1.0$	0,874 1,57	$2,2 \cdot 10^4 a$	NbC 3500°C
Ag^{109}	Ag^{110m}	$\sigma_{th}= 3.2$	1,385 1,475 1,505	253 d	Ag 961°C

wichtigsten nuklearen Daten, die nutzbaren Gammaenergien, die auftretenden Störaktivitäten sowie die jeweiligen Gamma-spektren aufgeführt.

Kobalt wird häufig zur Fluenzmonitierung bei Kurz- und Langzeitbestrahlungen rein in Form von Folien, Drähten oder in Aluminiumlegierungen verwandt und liefert dabei ausgezeichnete Ergebnisse [40, 41]. Der Wirkungsquerschnitt für Neutroneneinfang ist im thermischen Energiebereich gut bekannt. Bis zu etwa 100 keV folgt der Einfangquerschnitt einem $1/v$ -Verlauf, dem sich bei 135 eV und 5 keV Resonanzen anschließen. Das Verhältnis des Resonanzintegrals zum thermischen Einfangquerschnitt (2200 m/s) ist etwa 1,9, so daß Kobalt als ein nahezu thermischer Fluenzmonitor bezeichnet werden kann. Zur Verbesserung der Genauigkeit der Fluenzbestimmung ist gegebenenfalls für ein Reaktorspektrum mit wesentlichem nicht-thermischem Anteil ein Korrekturfaktor aus Messungen zu ermitteln.



Nukleare Daten

$$\sigma_1^{59} + \sigma_2^{59} = \sigma^{59} = (37,4 \pm 0,15) \text{ barn [44]}$$

$$\sigma^{60} = (6,0 \pm 0,7) \text{ barn [45]}$$

$$\sigma^{60m} = (100 \pm 17) \text{ barn [45]}$$

$$\lambda^{60} = (4,17 \pm 0,06) \cdot 10^{-9} \text{ sec}^{-1}$$

$$t_{1/2}^{60} = (5,27 \pm 0,07) \text{ a [46]}$$

$$\lambda^{60m} = (1,1 \pm 0,002) \cdot 10^{-3} \text{ sec}^{-1}$$

$$t_{1/2}^{60m} = (10,47 \pm 0,02) \text{ min [47]}$$

$$\gamma^{59} = 100 \%$$

Nutzbare Gammaenergie

$$E_1 = 1,173 \text{ MeV}$$

$$H_1 = 99 \%$$

$$E_2 = 1,333 \text{ MeV}$$

$$H_2 = 99,1 \%$$

Störaktivitäten

keine

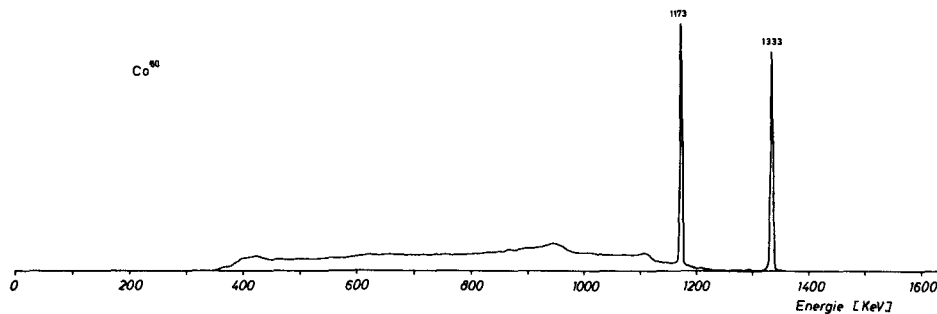
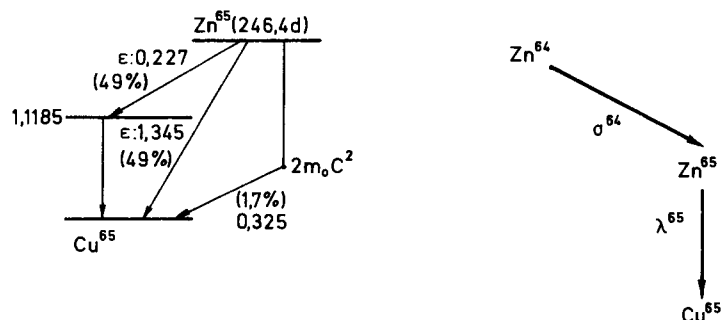


Abb. 2.2 Aktivierungsdaten für die Reaktion $\text{Co}^{59} (n, \gamma) \text{Co}^{60}$

Zn^{64} besitzt im thermischen Bereich einen nahezu konstanten Einfangquerschnitt, dem sich oberhalb von 1 keV Resonanzen anschließen. Dieses Isotop wird weniger als Fluenzmonitor verwendet, da seine Vorzüge offenbar hinter denen des Kobalts stark zurückfallen.



Nukleare Daten

$$\sigma^{64} = (0,47 \pm 0,05) \text{ barn [45]}$$

$$\lambda^{65} = 3,2559 \cdot 10^{-8} \text{ sec}^{-1}$$

$$t_{1/2}^{65} = 246,4 \text{ d [45]}$$

$$\gamma^{64} = 48,89 \% [45]$$

Nutzbare Gammaenergie

$$E_1 = 1,11851 \text{ MeV}$$

$$H_1 = 49 \%$$

Störaktivitäten

$$\text{Zn}^{68}(n, \gamma) \text{Zn}^{69m}$$

$$T_{1/2} = 13,9 \text{ h}, E_{\gamma} = 440 \text{ keV}$$

$$\text{Zn}^{64}(n, p) \text{Cu}^{64}$$

$$T_{1/2} = 12,8 \text{ h}, E_{\gamma} = 1340 \text{ keV (1\%)}$$

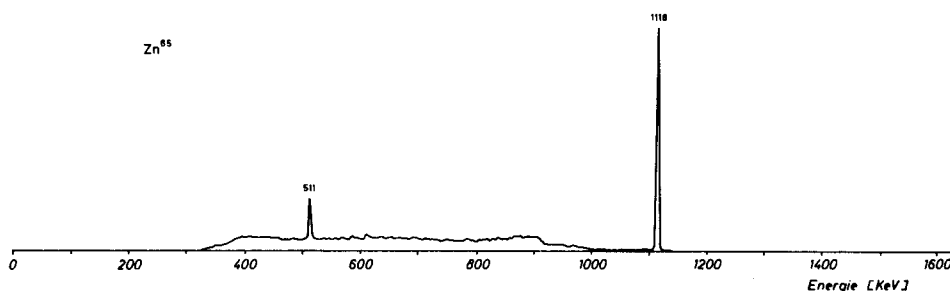
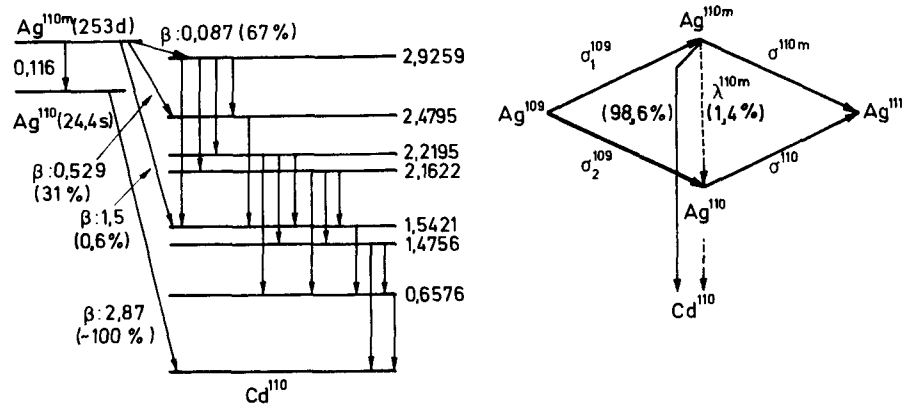


Abb. 2.3 Aktivierungsdaten für die Reaktion
 $\text{Zn}^{64}(n, \gamma) \text{Z}^{65}$

Silber-109 weist ebenfalls einen $1/\nu$ -Verlauf des Einfangsquerschnitts im thermischen Energiebereich auf; oberhalb etwa 5 eV folgt ein Bereich zahlreicher Resonanzen. Neben der Anwendung als thermischer Fluenzmonitor mit Benutzung von spektralen Korrekturfaktoren ist Ag^{109} gut als epithemischer Fluenzdetektor geeignet. In Verbindung mit Kobalt



Nukleare Daten

$$\begin{aligned}\sigma_1^{109} &= (3,2 \pm 0,4) \text{ barn [45]} \\ \sigma_2^{109} &= (110 \pm 10) \text{ barn [45]} \\ \sigma^{110m} &= (82 \pm 7) \text{ barn [49]} \\ \sigma^{110} &= 82 \text{ barn [50]} \\ \lambda^{110m} &= 3,171 \cdot 10^{-8} \text{ sec}^{-1} \\ t_{1/2}^{110m} &= 253 \text{ d} \\ \lambda^{110} &= 2,841 \cdot 10^{-2} \text{ sec}^{-1} \\ t_{1/2}^{110} &= 24,4 \text{ sec} \\ \gamma^{109} &= 48,65 \text{ \%}\end{aligned}$$

Nutzbare Gammaenergie

$$\begin{aligned}E_1 &= 1,384 \text{ MeV} \\ H_1 &= 25,8 \text{ \%} \\ E_2 &= 1,475 \text{ MeV} \\ H_2 &= 4,24 \text{ \%} \\ E_3 &= 1,505 \text{ MeV} \\ H_3 &= 13,9 \text{ \%}\end{aligned}$$

Störaktivitäten

$$\begin{aligned}Ag^{107}(n, \gamma) Ag^{108} \\ T_{1/2} = 2,4 \text{ m}, E_{\gamma max} = 633 \text{ keV}\end{aligned}$$

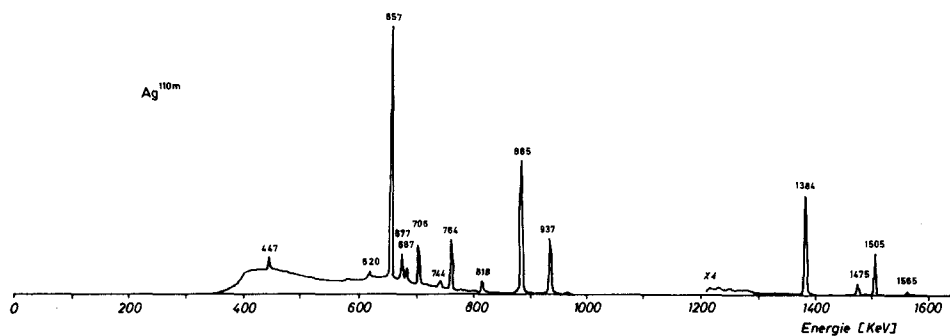


Abb. 2.4 Aktivierungsdaten für die Reaktion $Ag^{109}(n, \gamma) Ag^{110m}$

kann Ag^{109} Informationen über eine spektrumabhängige integrierte Neutronenflußdichte geben [42].

Die genannten aktivierten Isotope emittieren Gammaquanten mit Energien oberhalb 1 MeV. In diesem Energiebereich ist die Selbstabsorption im Brennstoff klein, so daß eine gute Transmission auch von Zerfällen, die im Zentrum des Brennelementes stattfinden, gewährleistet ist.

Außer den in Tabelle 2.1 genannten lassen sich für spezielle Anwendungen einige Isotope anführen (Tabelle 2.2), die durch schnelle Spaltneutronen aktiviert werden.

Tabelle 2.2

Isotop für Bei- mischung	Isotop für Messung	Einfang- quer- schnitt [mbarn]	E_γ [MeV]	$T_{1/2}$	Max. Temp.- Best. in der Verbindung
Cu^{63} (n, α)	Co^{60}	0,72	1,173 1,333	5,27 a	Cu_2O 1230°C Cu O 1336°C
Ni^{60} (n, p)	Co^{60}	5	1,173 1,333	5,27 a	NiO 1960°C Ni 1455°C
Rh^{103} (n, 2n)	Rh^{102}	0,356	1,103 1,370 1,570	210 d	Rh 1966°C

Von diesen erfüllen diejenigen am besten die gestellten Anforderungen, die nach der Bestrahlung Co^{60} ergeben. In der vorliegenden Arbeit wurden vorrangig Isotope untersucht, die in thermischen Reaktoren zum Einsatz kommen. Daher soll auf Tabelle 2.2 nicht weiter eingegangen werden.

Von den in beiden Tabellen aufgeführten Isotopen erfüllt Kobalt-59 am besten die gestellten Bedingungen für einen Fluenzdetektor. Daneben läßt es sich gut mit dem Brennstoff oder den Hüllmaterialien vermischen. Co^{59} wird in der nuklearen Meßtechnik vorwiegend zur Messung der integrierten

thermischen Neutronenflußdichte verwandt und liefert dabei gute Ergebnisse. Es sind verschiedene Arbeiten erschienen, die sich mit diesem Fluenzdetektor befassen [40, 41]. Für eine weitergehende Information sei hierauf verwiesen.

Um die Eignung der genannten Isotope im Hinblick auf ihre Halbwertszeit zu demonstrieren, wurden für sie im Vergleich mit den von anderen Autoren zur Abbrandindikation benutzten Spaltprodukten die Zeitkorrekturfaktoren ermittelt, die den Anteil der gebildeten Spalt- bzw. Aktivierungsproduktatome berücksichtigen, der während der Bestrahlungszeit wieder zerfällt.

Für die Berechnung wurde eine über die betrachtete Zeit konstante Spalt- bzw. Reaktionsrate angenommen.

Die in der Zeit T gebildeten Atome des Spaltproduktes bzw. Aktivierungsproduktes ergeben sich zu

$$N = \int_0^T R(t) dt \quad (4)$$

Hierbei ist $R(t)$ die mit der Spaltausbeute bewichtete Spalt-rate bei Spaltprodukten bzw. die Reaktionsrate bei Aktivierungsprodukten.

Bei Berücksichtigung des während der Bestrahlung stattfindenden radioaktiven Zerfalls mit der Zerfallskonstanten λ ergibt sich für die Gesamtzahl der Atome bei Bestrahlungs-ende

$$N' = \int_0^T R(t) e^{-\lambda(T-t)} dt \quad (5)$$

Der Zeitkorrekturfaktor F folgt aus

$$F = \frac{N'}{N} = \frac{1}{\lambda T} (1 - e^{-\lambda T}) \quad (6)$$

Dieser Faktor ist in Abb. 2.5 für die Fluenzdetektoren Co^{60} , Zn^{65} und $\text{Ag}^{110\text{m}}$ sowie für die Spaltprodukte Cs^{137} , Ru^{106} , Cs^{134} , Ce^{144} , Zr^{95} und Ba^{140} in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit aufgetragen. Danach stellen die genannten Isotope im Hinblick auf ihre Halbwertszeit durchaus gute Abbrandindikatoren dar.

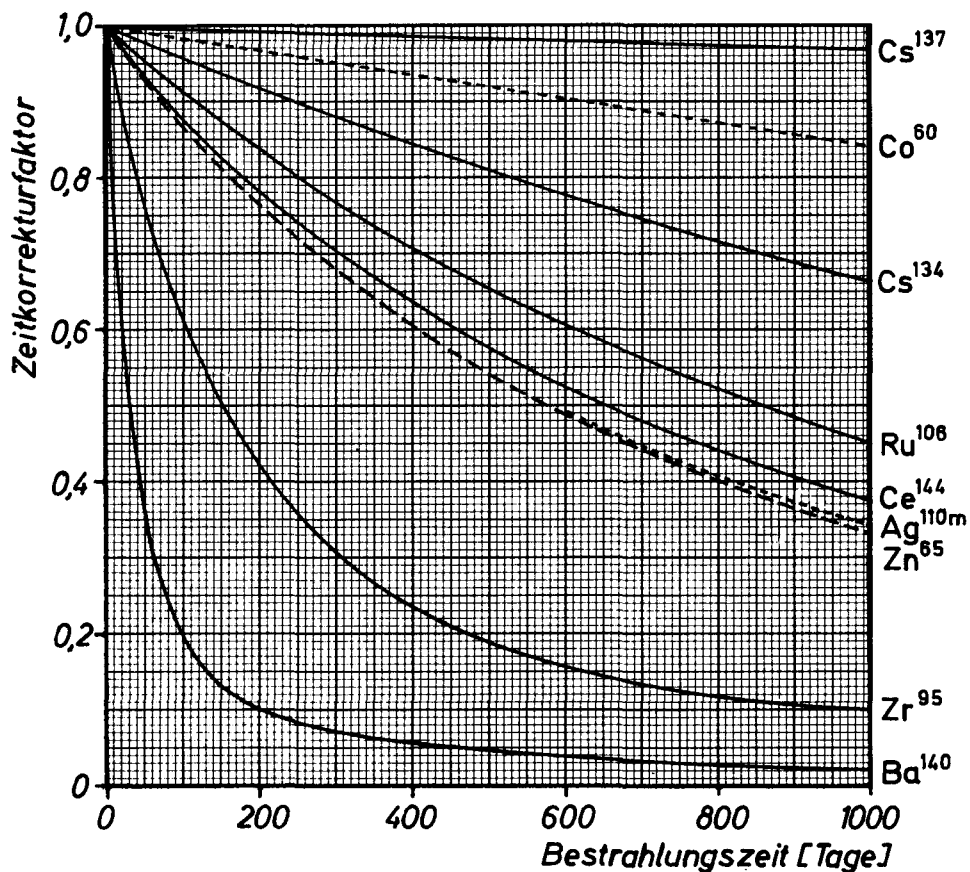


Abb. 2.5 Zeitkorrekturfaktoren für die Benutzung von Fluenzdetektoren und Spaltprodukten zur Abbrandbestimmung

2.4. Möglichkeiten der Beimischung

Spaltstoff und beigemischtes Fluenzisotop werden gleichzeitig im Neutronenfluß bestrahlt und zusammen einer quantitativen Aktivitätsanalyse unterzogen. Demnach ist bei der Beimischung keine Vorsorge für eine spätere Trennung beider Komponenten zu treffen, lediglich der speziellen Besonderheit des Brennstofftyps, seiner Form, seiner chemischen Zusammensetzung sowie der Betriebstemperatur, der er ausgesetzt ist, ist Rechnung zu tragen.

Die einfachste und gleichzeitig beste Art der Beimischung ist die homogene Verteilung im Brennstoff. Alle Fehlerquellen, die sich aus der unterschiedlichen Flußabsenkung am Ort des Brennstoffs und am Ort des Fluenzdetektors ergeben, werden völlig ausgeschaltet. Jedoch werden dieser Methode von Seiten der Brennstoffhersteller erhebliche Vorbehalte entgegen gesetzt, da zahlreiche Bestrahlungs- und Verträglichkeitsuntersuchungen erneut durchgeführt werden müßten, die bereits für den Brennstoff allein erfolgreich abgeschlossen sind.

Von dieser Methode der Beimischung muß daher bei allen zu erwartenden Vorteilen Abstand genommen werden. Für verschiedene Brennelementtypen sollen hier jedoch einige andere Möglichkeiten der Beimischung des Fluenzdetektors aufgezeigt werden.

MTR-Plattenbrennelemente enthalten den Spaltstoff in metalischer Form und in hoher Anreicherung. In jede Brennstoffplatte wird ein Draht, der das Fluenzisotop in der geforderten Menge enthält, bei der Plattenherstellung zwischen Spaltstoff tragendem Meat und spaltstofffreier Deckplatte eingewalzt. Durch eine Abtastmessung (γ -scan) kann sowohl die axiale Abbrandverteilung als auch der integrale Abbrand ermittelt werden. Die Flußabsenkung, die für diesen Fall für Elemente des FRJ-1 mit dem Transportprogramm THERMOS [51] errechnet wurde, liegt zwischen 1 % und 2 %.

Bei stabförmigen Brennelementen, die bevorzugt in Leichtwasserreaktoren vom Siede- und Druckwassertyp Verwendung finden, bieten sich mehrere Möglichkeiten der Beimischung des Fluenzisotops an. In den mit Brennstoff in Form von Tabletten angefüllten Brennstoffrohren können an genau bestimmten Stellen Tabletten eingeladen werden, die die für den quantitativen Nachweis erforderliche Menge des Fluenzisotops enthalten. Bei der Messung wird an den vorbezeichneten Stellen die Aktivität des Fluenzisotops festgestellt und daraus der Abbrand des Gesamtelementes unter Berücksichtigung der örtlichen axialen Neutronenflußdichteverteilung ermittelt.

Eine weitere Anwendungsmöglichkeit bietet die Ausnutzung des im Edelstahlhüllmaterial enthaltenen Kobalts. Der Kobaltgehalt läßt sich sehr genau durch eine Aktivierungsanalyse des verwendeten Materials bestimmen, so daß aus der nach der Bestrahlung in der Brennstoffumhüllung auftretenden Co^{60} -Aktivität auf die Fluenz und damit auf den Abbrand geschlossen werden kann. Sowohl die axiale Abbrandverteilung als auch der integrale Abbrandwert sind bestimmbar. Die zwischen Brennstoff und Hüllmaterial auftretende Flußabsenkung wird

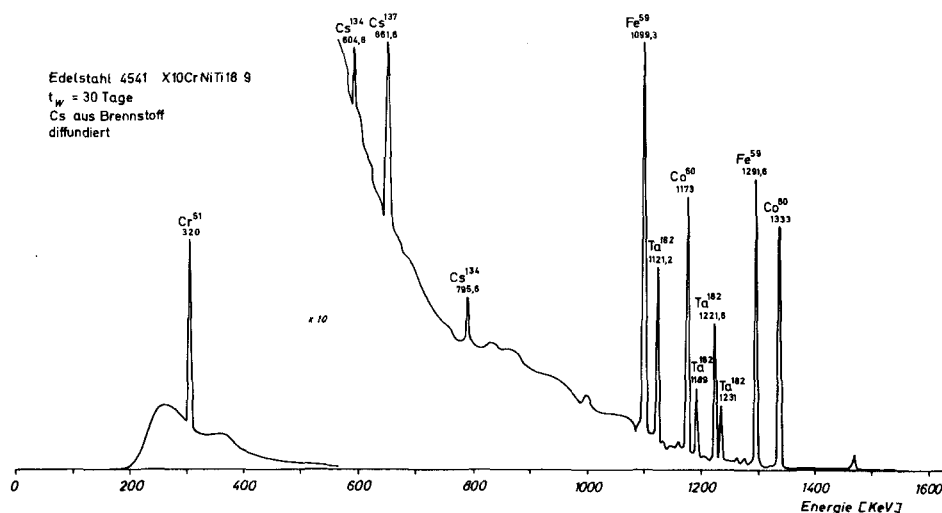


Abb. 2.6 Gammaspektrum von Edelstahl
4541 X10CrNiTi 18 9

durch Messung oder durch Berechnung mit Hilfe von Transportprogrammen ermittelt und bei der Abbrandbestimmung berücksichtigt.

Abb. 2.6 zeigt das Gammaspektrum einer bestrahlten Edelstahlprobe. Die auftretenden Co^{60} -Linien sind deutlich im Spektrum zu identifizieren. Die Bestrahlung erfolgte zusammen mit einem mit Spaltstoff gefüllten Behälter. Die Cäsium-Isotope sind aus dem Brennstoff herausdiffundiert und haben sich auf der Edelstahlprobe abgesetzt. Sie gehören nicht zum eigentlichen Spektrum.

Da die Abbrandmessung innerhalb sehr kurzer Zeit nach dem Ende der Bestrahlung durchgeführt werden kann, ist es günstig, die Meßvorrichtung an der Lademaschine zu installieren und die Abbrandbestimmung während des Entladevorganges vorzunehmen. Damit bietet sich die Möglichkeit, noch während des Ausladevorganges nach der Größe des Abbrandzustandes darüber zu entscheiden, ob und wie das betreffende Element im Reaktor umgesetzt wird oder ob es für die Aufbereitung aus dem Reaktor zu entladen ist.

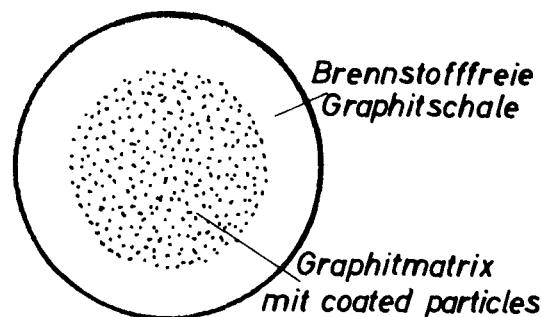


Abb. 2.7 Kugelbrennelement des THTR

Die Brennelemente für Hochtemperaturreaktoren vom Kugelhaufentyp bestehen aus einem inneren Kern, in dem die den Brenn- und Brutstoff enthaltenden ummantelten Teilchen homogen in einer Matrix aus gepreßtem Graphitpulver verteilt sind (Abb. 2.7). Der Kern wird von einer 10 mm dicken Schale aus Graphit umgeben. Insgesamt ergibt sich ein äußerer Kugeldurchmesser von 60 mm. In jeder Kugel befinden sich ca. 1 g hochangereichertes U^{235} und eine je nach Kugeltyp verschiedene Menge Th^{232} . Die coated particles des Typs WM 120 enthalten im Mittel etwa 0,071 mg U^{235} ; damit ist für jede Kugel eine Anzahl ummantelter Teilchen von etwa $1,4 \cdot 10^4$ erforderlich. Für die Beimischung des Fluenzdetektors werden spezielle beschichtete Partikel, die das Isotop in einer geeigneten chemischen Verbindung enthalten, hergestellt. Die chemische Verbindung soll im Zusammenwirken mit der Art der Umhüllung ein Herausdiffundieren des Isotops bei großen Temperaturgradienten verhindern. Die Spezialpartikel werden der inneren Brennstoffmatrix homogen verteilt beigegeben, bis der erforderliche prozentuale Anteil im Verhältnis zur Spaltstoffmenge erreicht wird.

Die Flußabsenkung im beschichteten Brennstoffteilchen beträgt im Vergleich zur Neutronenflußdichte in der Graphitmatrix etwa 1 % bis 2 %. Dieser Wert gilt für Th^{232} - U^{235} -Verhältnisse zwischen 5:1 und 12:1 [52]. Bei einem Kobaltgehalt der speziellen Partikel von 0,33 mg ist der makroskopische Absorptionsquerschnitt gleich dem der Brennstoffpartikel. Damit ist auch annähernd die Absenkung des Neutronenflusses gleich.

Die Abbrandbestimmung wird nach dem Verlassen des Kugelabzugsrohres, in dem die Brennelemente sich etwa 4 Tage bei verschwindender Neutronenflußdichte aufhalten, vorgenommen und dient zur Steuerung der Beschickungsanlage.

3. Physikalische Voraussetzungen der Methode

3.1. Untersuchung des Spaltproduktspektrums

Zur Untersuchung des Spaltproduktspektrums wurden im Forschungsreaktor FRJ-1 der Kernforschungsanlage Jülich einzelne beschichtete Teilchen mit einem U^{235} -Gehalt von 0,071 mg und einem Th^{232} -Gehalt von 0,355 mg in einem Neutronenfluß von etwa $6 \cdot 10^{13}$ n/cm²s bestrahlt. Die Fluenz betrug $1,6 \cdot 10^{19}$ n/cm² entsprechend einem Abbrand von 1,09 %. Bei diesem Abbrand konnten die bestrahlten Proben noch einfach gehandhabt werden. Mit Hilfe eines hochauflösenden γ -Spektrometers wurde zu verschiedenen Zeiten nach Bestrahlungsende das Spaltproduktspektrum gemessen.

Das Spektrometer besteht aus einem lithiumgedrifteten Germanium-Kristall (Ge(Li)) von 9,6 cm² aktiver Fläche. Der Kristall hat einen rechtwinkligen Querschnitt von 34,5.28 mm, ist fünfseitig coaxial gedriftet und besitzt ein aktives Volumen von etwa 25 cm³. Das Auflösungsvermögen ergibt bei 1.333 MeV eine Halbwertsbreite von 2,9 keV und eine Zehntelwertsbreite von 4,8 keV. Das Peak/Compton-Verhältnis beträgt 15:1 und das Ansprechvermögen 3,0 %, verglichen mit einem 3"x3" NaJ(Tl)-Detektor.

Die Abhängigkeit des relativen Photo-Ansprechvermögens bzw. der Nachweiswahrscheinlichkeit des Detektors von der Energie der einfallenden γ -Strahlung ist für einen festen Abstand des Präparats vom Detektor von 5 cm in Abb. 3.1 dargestellt. Die Abbildung zeigt die für ein Eu^{152} -Präparat gemessenen Werte sowie die nach [53] berechnete semiempirische Kurve.

Ladungsempfindlicher Vorverstärker und Hauptverstärker sind spezielle Spektroskopiertypen der Firma Canberra. Die Verwendung eines Baseline-Restorer/Pile up Rejector der gleichen Firma ermöglicht eine gleichbleibend gute Auflösung auch bei

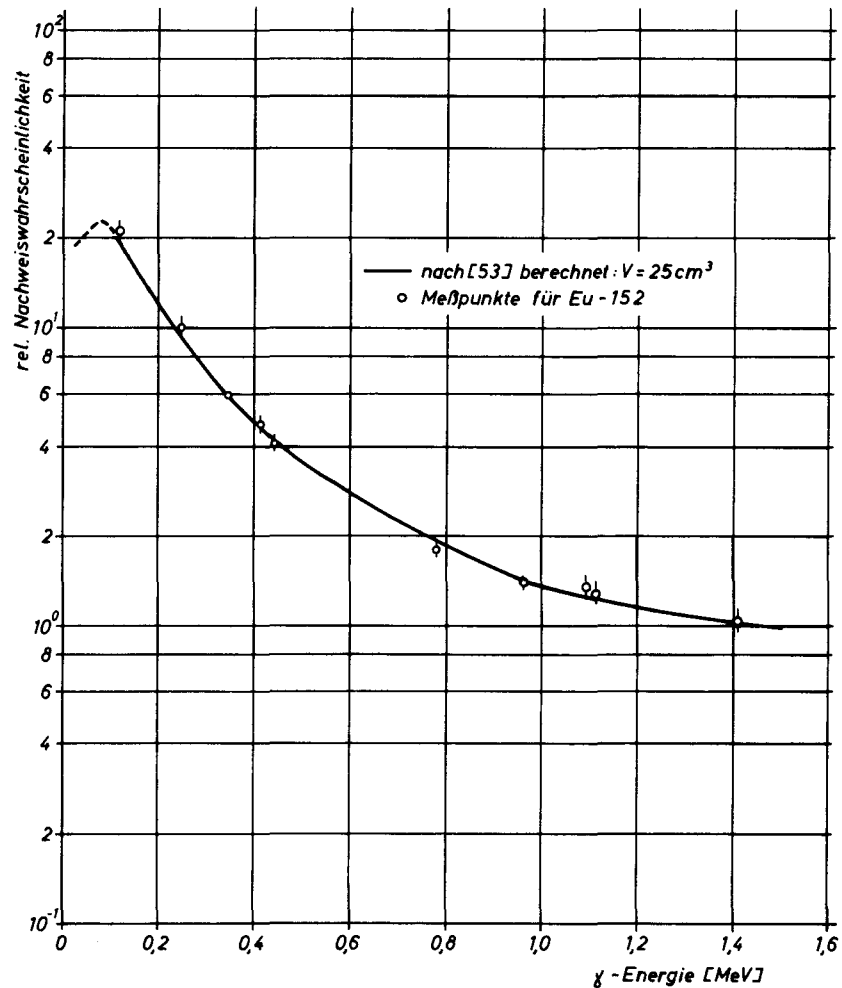


Abb. 3.1 Relatives Ansprechvermögen als Funktion der γ -Energie für einen 25 cm^3 -Ge(Li)-Detektor

hohen Zählraten. Der Vielkanalanalysator ist von der Firma Intertechnique und hat 4000 Kanäle. Die Kodierfrequenz des ADC beträgt 20 MHz. Die Ausgabe erfolgt wahlweise über einen Punktdrucker der Firma Omnigraphic, über Schreibmaschine sowie über Lochstreifen.

Für erste Untersuchungen wurden Spaltproduktspektren zwischen 5,5 und 200 Stunden nach Bestrahlungsende mit einem $3'' \times 3''$ -NaJ(Tl)-Kristall "Integralline" von Harshaw und Hewlett-

Packard Linear-Verstärker aufgenommen, wobei jeweils 1000 Kanäle des Vielkanalanalysators benutzt wurden.

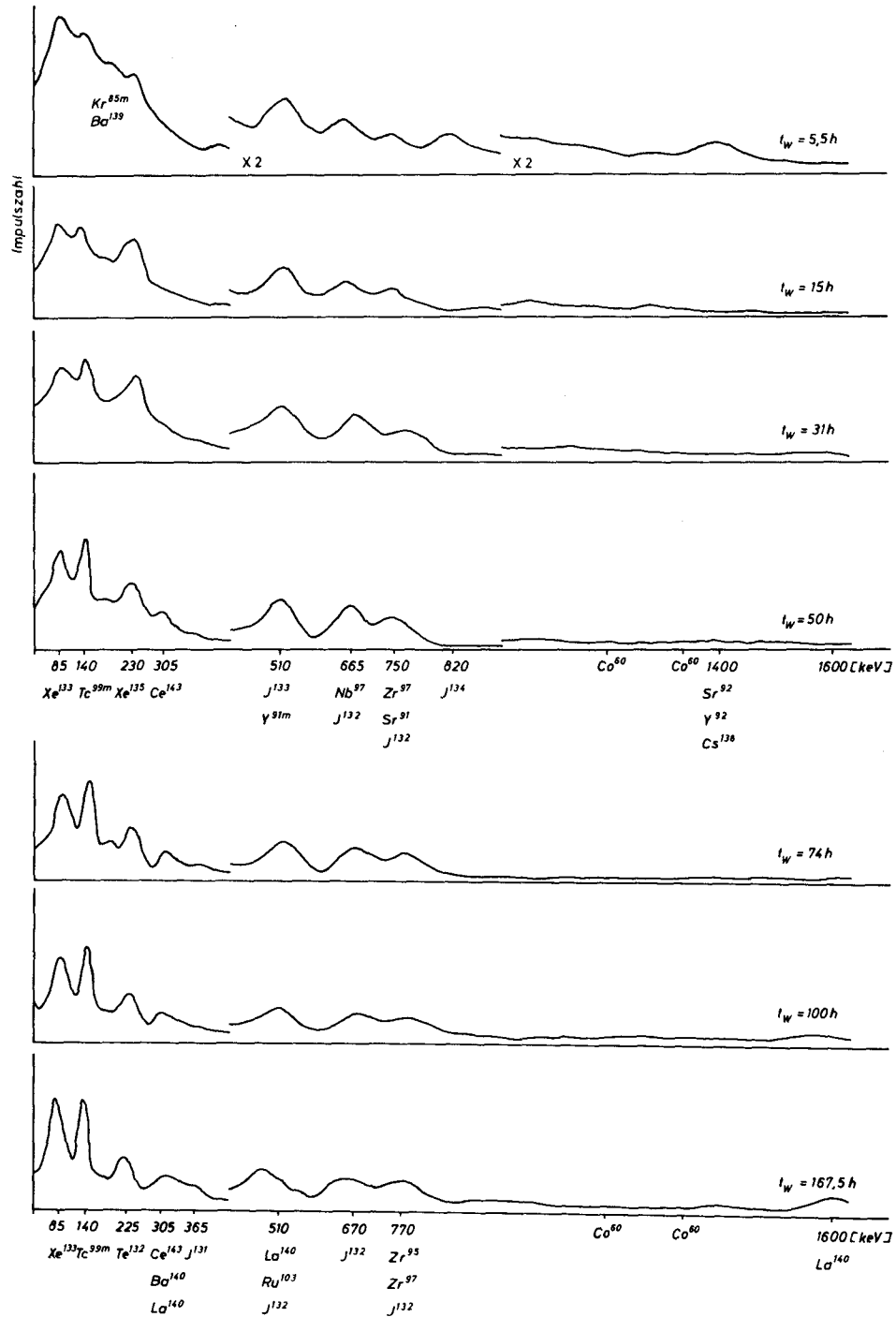


Abb. 3.2 Spaltproduktspektren für verschiedene Zeitpunkte nach Bestrahlungsende (3"x3" NaJ(Tl))

Abb. 3.2 zeigt die mit NaJ(Tl) gemessenen Spaltproduktspektren. Es sind nur wenige breite Linien zu erkennen, die die Einhüllende verschiedener Photopeaks darstellen. Die identifizierbaren Linien sind gekennzeichnet. Oberhalb 850 keV bildet sich nach 15 Stunden Kühlzeit ein Kontinuum ohne erkennbare Linien. Bei wachsender Abklingzeit verändern sich im niederenergetischen Teil des Spektrums Lage und Höhe der Linien. Dieses Phänomen ist durch das unterschiedliche Zeitverhalten der unter den breiten Linien liegenden Photopeaks erklärbar. Im hochenergetischen Teil wird das Kontinuum flacher und erstreckt sich etwa 50 Stunden nach Bestrahlungsende über den Energiebereich von 850 keV bis 1,5 MeV.

Die Abbildung macht deutlich, daß NaJ(Tl)-Detektoren für die Messung des Abbrandes nach der Methode der Beimischung aktivierbarer Isotope völlig ungeeignet sind. Die durch Fluenzdetektoren entstehenden Aktivitäten können nicht aus dem Spaltproduktuntergrund aufgelöst und identifiziert werden.

Um einen Eindruck von der weitaus besseren Eignung eines Ge(Li)-Detektors zu vermitteln, wurde das Spaltproduktspektrum 100 Stunden nach Bestrahlungsende einmal mit einem NaJ(Tl)-Kristall und einmal mit einem Ge(Li)-Detektor aufgenommen und in Abb. 3.3 dargestellt. Die Abbildung zeigt,

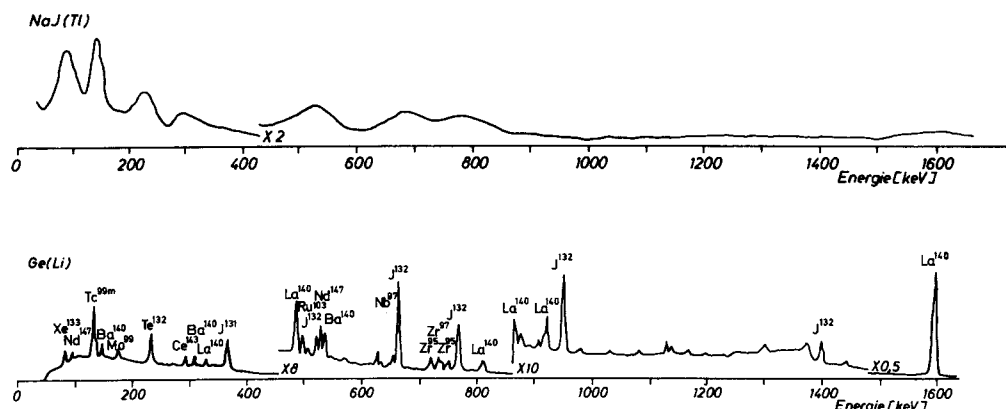


Abb. 3.3 Spaltproduktspektrum 100 Stunden nach Bestrahlungsende, aufgenommen mit NaJ(Tl)-Kristall und mit Ge(Li)-Detektor

daß mehrere Photopeaks unter einer breiten Linie des NaJ-Spektrums verborgen sind.

Wegen der weitaus besseren Auflösung und der damit zu erwartenden guten Eignung zur Abbrandbestimmung nach der beschriebenen Methode wurden Spaltproduktspektren zu verschiedenen Zeiten zwischen 50 und 600 Stunden nach Bestrahlungs-ende mit einem Ge(Li)-Detektor gemessen und in Abb. 3.4 dargestellt. In der Abbildung sind die nutzbaren Photolinien der Fluenzisotope Co^{60} , Zn^{65} und $\text{Ag}^{110\text{m}}$ eingezeichnet, um deren Lage relativ zu den Spaltproduktlinien zu kennzeichnen. Bei den Messungen war die Pile-up-Unterdrückung derart eingestellt, daß alle Impulse von Energien unter 400 keV verworfen wurden. Dieser Energiebereich ist für die hier betrachtete Methode unwesentlich. Die damit erzielte Impulsratenverkleinerung verbessert das Auflösungsvermögen des Spektrometers.

Die Analyse der Spektren macht deutlich, daß etwa 80 Stunden nach Bestrahlungs-ende im Energiebereich zwischen 1,0 MeV und 1,37 MeV nur noch einzelne, äußerst schwache Spaltproduktaktivitäten auftreten, die in Abb. 3.5 b gesondert aufgeführt sind. Es handelt sich größtenteils um Gammalinien mit geringem Zerfallsanteil von Aktivitäten kurzer Halbwertszeit und kleiner Spaltausbeute. Im Spektrum, das 312 Stunden nach dem Ende der Bestrahlung aufgenommen wurde, sind diese Linien fast völlig verschwunden (Abb. 3.5 c). Ihre Intensität reicht nicht aus, um sie im Compton-Untergrund der La^{140} -Linie von 1,597 MeV, deren Intensität bei kurzen Bestrahlungszeiten zunächst mit der Abklingzeit wächst, identifizieren zu können. Nur einige Linien von Spaltprodukten mit längerer Halbwertszeit, wie z.B. Te-J-132 und Cs^{134} , bleiben erkennbar.

Durch sie werden jedoch die 1,118 MeV-Linie des Zn^{65} sowie der 1,333 MeV-Photopeak des Co^{60} und auch die $\text{Ag}^{110\text{m}}$ -Aktivität bei 1,385 MeV völlig ungestört gelassen. Oberhalb

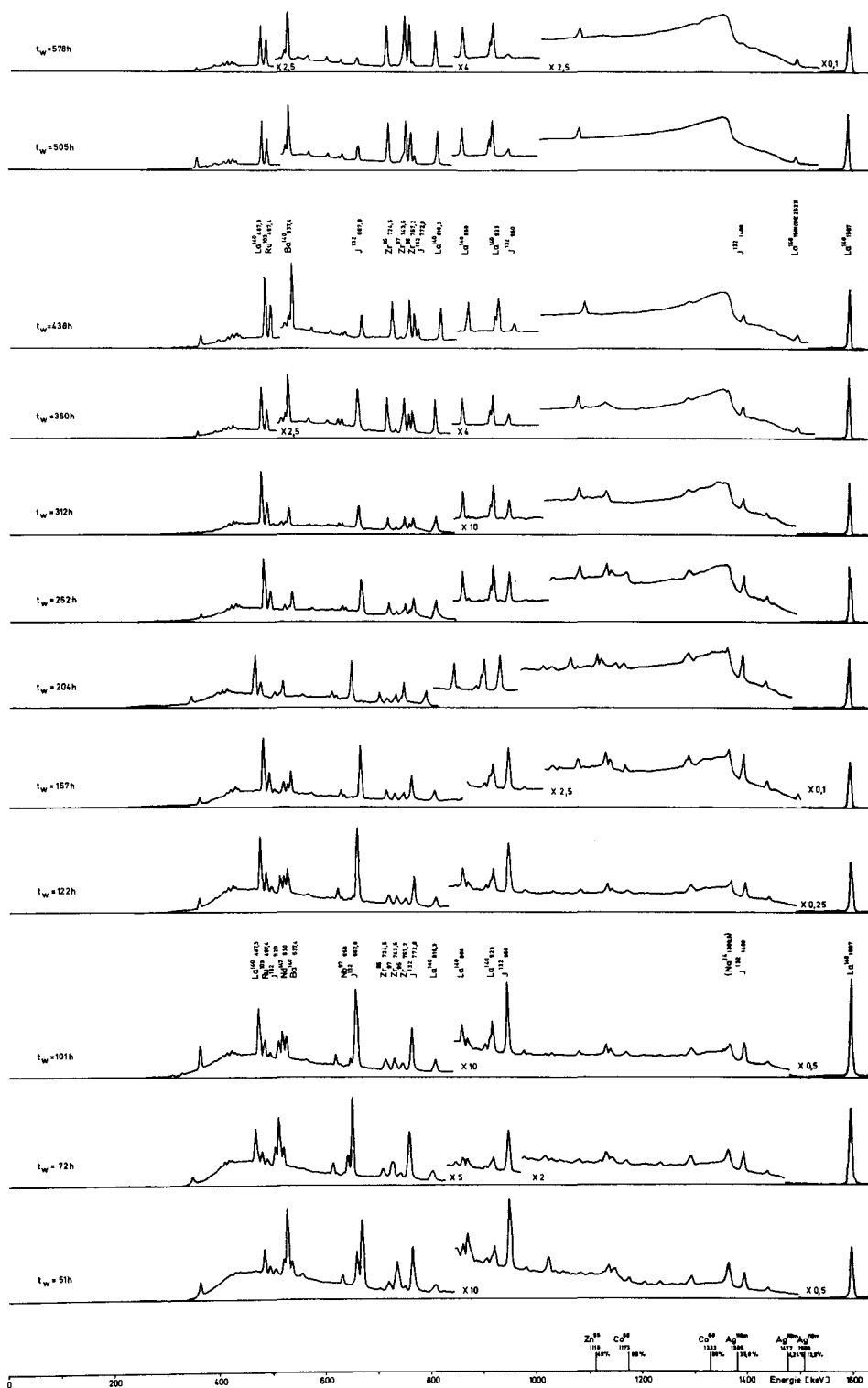


Abb. 3.4 Spaltproduktspektren, gemessen zu verschiedenen Zeitpunkten nach Bestrahlungsende (Ge(Li)-Detektor, 25 cm³)

1,4 MeV schließt sich ein Teil des Spektrums an, in dem etwa 80 Stunden nach Bestrahlungsende die 1,475 MeV-Linie und die 1,505 MeV-Linie des $\text{Ag}^{110\text{m}}$ ebenfalls störungsfrei gemessen werden können.

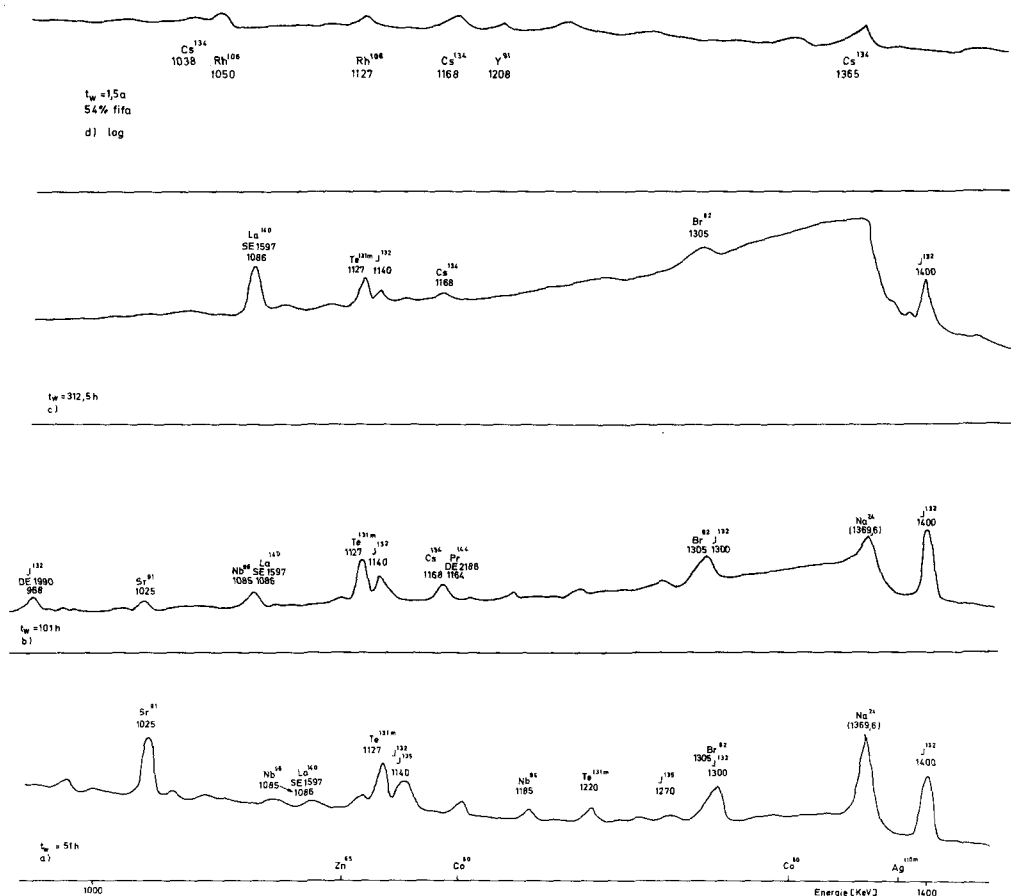


Abb. 3.5

Bereich von 1,0 bis 1,5 MeV im Spaltproduktenspektrum zu verschiedenen Zeiten nach Bestrahlungsende
a) 51 Stunden, b) 101 Stunden,
c) 312 Stunden, d) 1,5 Jahre, 54 % Abbrand
SE:single escape peak DE:double escape peak

Die 1,333 MeV-Linie des Co^{60} ist bereits nach einer Kühlzeit von 50 Stunden für eine Messung nutzbar, obwohl zu diesem Zeitpunkt zahlreiche Linien im interessierenden Bereich auftreten. Keine befindet sich jedoch in der Umgebung von ± 30 keV, so daß eine quantitative Auswertung

bei dem Auflösungsvermögen der Ge(Li)-Detektoren ohne Schwierigkeiten möglich ist (Abb. 3.5 a).

Lediglich die 1,173 MeV-Linie des Co^{60} wird durch Linien im Spaltproduktspektrum gestört. In ihrer unmittelbaren Nachbarschaft liegen die 1,169 MeV-Linie des Cs^{134} (2,5 % rel. Häufigkeit) sowie die 1,164 MeV-Doppelentweichlinie des Pr^{144} bei 2,186 MeV (1,4 % rel. Häufigkeit). Zwar kann auch diese Co^{60} -Linie zur Abbrandbestimmung benutzt werden, da sie mit guten Spektrometern von den Störaktivitäten getrennt wird, jedoch wird wegen der Existenz der ungestörten 1,333 MeV-Linie darauf verzichtet. Gegebenenfalls kann die 1,173 MeV-Linie zur Vergrößerung der Genauigkeit bei genügend langer Meßzeit für die Auswertung herangezogen werden.

Die bisherigen Ausführungen bezogen sich auf kurze Bestrahlungs- sowie kurze Abklingzeiten. Die Aufnahme von Spaltproduktspektren von hochbestrahlten, lange abgeklungenen U^{235} -Proben zeigt im Bereich zwischen 1,0 MeV und 1,37 MeV außer den genannten ebenfalls keine störenden Aktivitäten, obwohl bis zum Meßzeitpunkt die La^{140} -Aktivität bereits weitgehend abgeklungen ist (Abb. 3.5 d).

Eine genaue Untersuchung des Bereiches von 900 keV bis 1,5 MeV im Spaltproduktspektrum wurde mit einem Compton-Summen-Spektrometer hoher Meßempfindlichkeit unter Verwendung von Ge(Li)-Detektoren durchgeführt [54].

Bei diesem Spektrometertyp wird mit zwei Detektoren gemessen. Aus dem Spektrum des ersten wird der Rückstreupeak, aus dem des zweiten die Comptonkante zur Summenbildung herangezogen. Auf diese Weise ergibt sich eine Aufnahme, die selbst schwache Linien bei nahezu fehlendem Untergrund zu messen gestattet. Mit dem erwähnten Spektrometer wurde eine hoch abgebrannte Uranprobe nach langer Kühlzeit untersucht. Die im Bereich von 0,9 MeV bis 1,5 MeV nachgewiesenen Linien sind

in Abb. 3.6 dargestellt. Hierbei handelt es sich durchweg um Linien geringen Zerfallsanteils und langer Halbwertszeit, die jedoch außer der bereits erwähnten Cs^{134} -Linie die für die Fluenzmessung benutzten Isotope nicht stören.

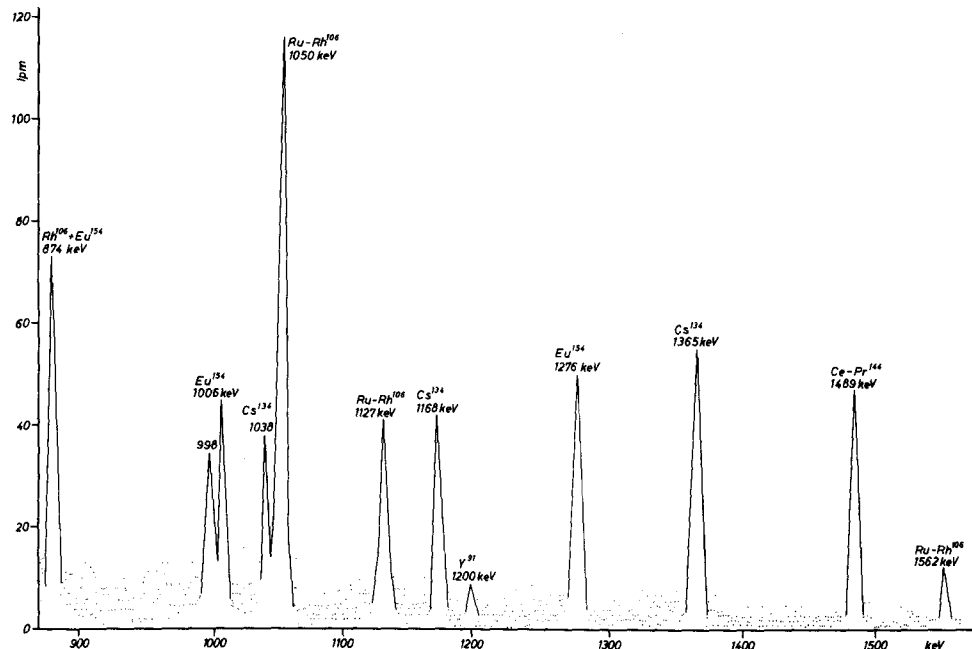


Abb. 3.6 Ausschnitt des Spektrums einer hochabgebrannten Brennstoffprobe, aufgenommen mit einem Compton-Summen-Spektrometer [54]

Kurzlebige Aktivitäten werden bereits bei kleinen Bestrahlungszeiten in genügender Menge erzeugt, während langlebige Spaltprodukte auch noch nach längerer Abkühlzeit eine nennenswerte Aktivität aufweisen. Somit ist auch bei langen Bestrahlungszeiten in dem besprochenen Energiebereich nicht mit dem Auftreten störender Spaltproduktlinien zu rechnen. Dies kann auch durch die systematische Analyse der in [55] gegebenen Zusammenstellung der bekannten Gammazerfälle der Spaltprodukte bestätigt werden.

3.2. Spektroskopische Betrachtung der beigegebenen Isotope

Die Gammaspektren der in Abschnitt 2.3 für die Fluenzbestimmung vorgeschlagenen Isotope Co^{60} , Zn^{65} und $\text{Ag}^{110\text{m}}$ wurden aufgenommen und in Abb. 3.7 zusammen mit dem Spaltprodukt-

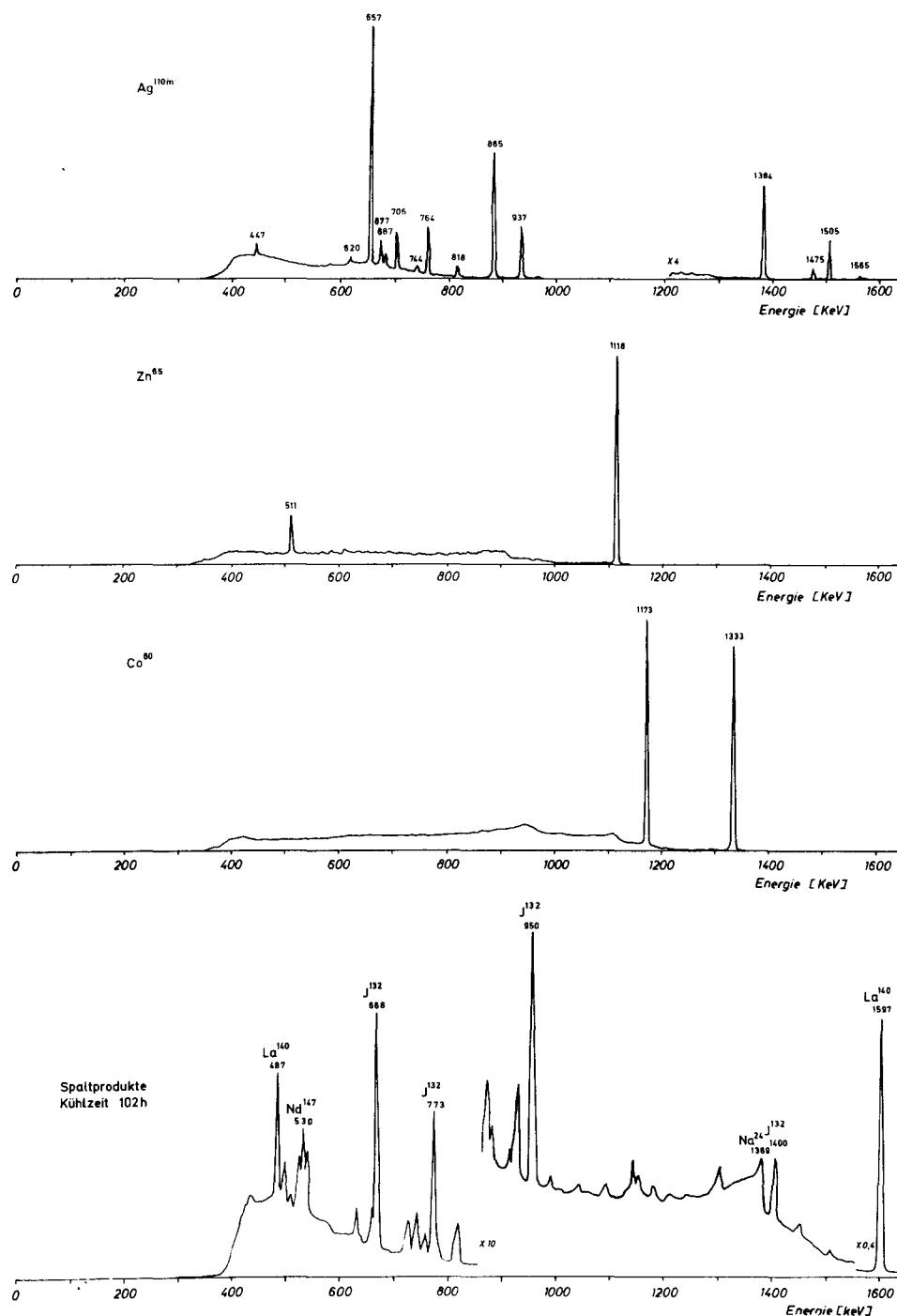


Abb. 3.7 Gammaspektren der Fluenzisotope Co^{60} , Zn^{65} und $\text{Ag}^{110\text{m}}$ im Vergleich zum Spaltproduktspektrum ($t_w = 100 \text{ h}$)

spektrum, gemessen 100 Stunden nach dem Ende der Bestrahlung, dargestellt.

Beide Linien des Co^{60} (1,173 MeV und 1,333 MeV) liegen in dem Bereich, der nahezu frei von Spaltproduktlinien ist. In unmittelbarer Nähe der 1,173 MeV-Linie befindet sich eine mit 2,5 % relativer Häufigkeit auftretende Linie des Cs^{134} bei 1,168 MeV, sowie die bei der Paarbildung auftretende Doppelentweichlinie des Pr^{144} bei 1,164 MeV. Beide Spaltprodukte sind langlebig. Cs^{134} klingt mit einer Halbwertszeit von 2,3 a ab, Pr^{144} besitzt als Tochter des Ce^{144} mit einer Halbwertszeit von 285 Tagen eine Halbwertszeit von 17 Minuten. Obwohl die Störung nur sehr schwach ist, wird für eine fehlerfreiere Abbrandbestimmung die Linie bei 1,333 MeV benutzt, die völlig ungestört auftritt. Sie befindet sich auf dem Compton-Untergrund von La^{140} , das eine γ -Linie mit 94 % relativer Häufigkeit bei 1,597 MeV besitzt. La^{140} mit einer Halbwertszeit von 40,2 h ist ein Tochterprodukt von Ba^{140} mit einer Halbwertszeit von 12,8 d. Die Isobarensplatausbeute beträgt bei der Spaltung von U^{235} 6,35 %.

Zur näheren Analyse dieses Untergrundes und zur Untersuchung seiner zeitlichen Variation im Verlauf von Bestrahlungs- und Kühlzeiten, wurde das System von Differentialgleichungen, das die Entstehung und den Zerfall des Spaltproduktpaares beschreibt, gelöst und im Vergleich zu Co^{60} für verschiedene Bestrahlungs- und Kühlzeiten die Aktivität von La^{140} berechnet. Dabei blieb die Aufaktivierung von Ba^{140} , La^{140} und Co^{60} unberücksichtigt.

Die Änderung der Zahl von Ba^{140} -Kernen mit der Zeit durch Bildung bei der Spaltung und durch radioaktiven Zerfall ergibt sich zu

$$\frac{dN^{\text{Ba}}(t)}{dt} = \alpha f(t) - \lambda^{\text{Ba}} N^{\text{Ba}}(t) \quad (7)$$

Die Größe $f(t) = \sigma_f^U \phi(t) N_o^U e^{-\sigma_a^U \phi(t)t}$ ist die Spaltrate für U^{235} mit der Ausgangskernzahl N_o^U und α die Isobarspaltausbeute.

Die zeitliche Änderung der La^{140} -Kerne durch Entstehung aus Ba^{140} und radioaktiven Zerfall wird durch die Gleichung

$$\frac{dN^{La}(t)}{dt} = -\lambda^{La} N^{La}(t) + \lambda^{Ba} N^{Ba}(t) \quad (8)$$

angegeben. Für die Bestrahlungszeit t_B folgt bei konstanter Neutronenflußdichte ϕ mit $f = \sigma_f^U \phi N_o^U$

$$N^{La}(t_B) = \frac{\lambda^{Ba} \alpha f}{\lambda^{Ba} - \sigma_a^U \phi} \left[\frac{e^{-\sigma_a^U \phi t_B} - e^{-\lambda^{La} t_B}}{\lambda^{La} - \sigma_a^U \phi} - \frac{e^{-\lambda^{Ba} t_B} - e^{-\lambda^{La} t_B}}{\lambda^{La} - \lambda^{Ba}} \right] \quad (9)$$

Mit den beiden Abkürzungen

$$N_o^{La} = N^{La}(t_B) \quad ; \quad N_o^{Ba} = N^{Ba}(t_B) = \frac{\alpha f}{\lambda^{Ba} - \sigma_a^U \phi} \left(e^{-\sigma_a^U \phi t_B} - e^{-\lambda^{Ba} t_B} \right) \quad (10)$$

ergibt sich für den Zeitpunkt der Messung nach der Kühlzeit t_w

$$N^{La}(t_w) = N_o^{La} e^{-\lambda^{La} t_w} + \frac{\lambda^{Ba} N_o^{Ba}}{\lambda^{La} - \lambda^{Ba}} (e^{-\lambda^{Ba} t_w} - e^{-\lambda^{La} t_w}) \quad (11)$$

Die für den Zeitpunkt t_B und t_w geltenden Gleichungen für Co^{60} lauten

$$N^{Co}(t_B) = \frac{\sigma_a^{Co} \phi N^{Co59}}{\lambda^{Co} - \sigma_a^{Co} \phi} \left(e^{-\sigma_a^{Co} \phi t_B} - e^{-\lambda^{Co} t_B} \right) \quad (12)$$

und mit $N_0^{Co} = N^{Co}(t_B)$

$$N^{Co}(t_w) = N_0^{Co} e^{-\lambda^{Co} t_w} \quad (13)$$

Die La^{140} -Aktivität erreicht abhängig von der Größe der zeitlich konstanten Neutronenflußdichte nach einer Bestrahlungszeit von 50 bis 100 Tagen ihren Maximalwert und fällt danach infolge des U^{235} -Abbrandes ab, während die Co^{60} -Aktivität nahezu linear mit der Zeit größer wird. Mit wachsender Bestrahlungsdauer nimmt das Verhältnis der Co^{60} -Aktivität zur La^{140} -Aktivität zu, und zwar um so mehr, je größer die Neutronenflußdichte ist. Meßtechnisch bedeutet dies, daß sich die Co^{60} -Linien immer deutlicher über den La^{140} -Compton-Untergrund hervorheben.

Abb. 3.8 stellt die Abhängigkeit des Aktivitätsverhältnisses A^{Co}/A^{La} von der Bestrahlungszeit t_B nach einer Kühlzeit von

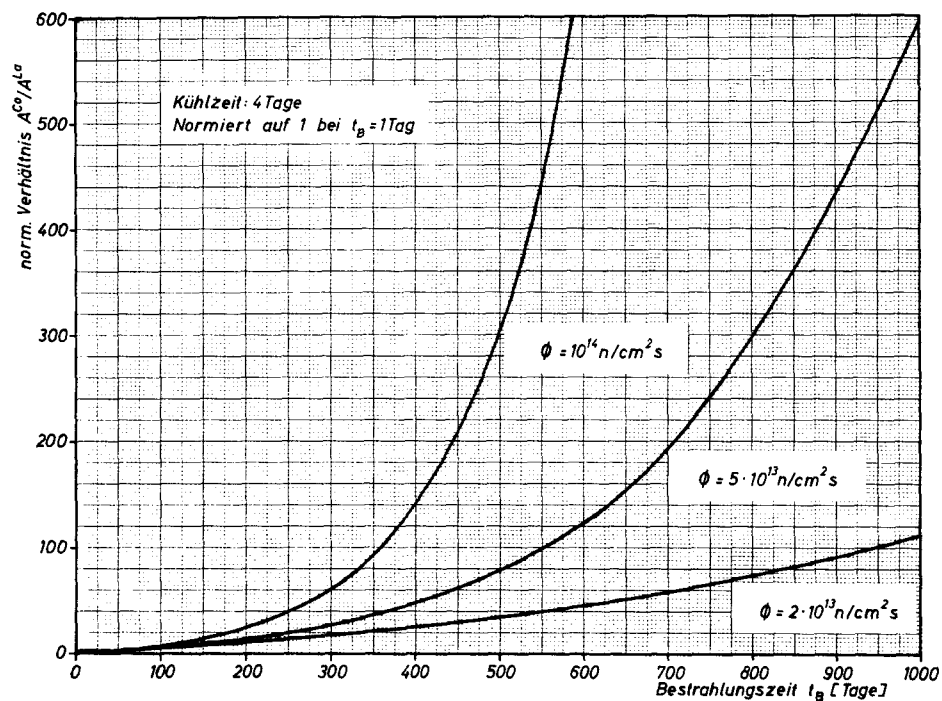


Abb. 3.8 Normiertes Aktivitätsverhältnis Co^{60}/La^{140} als Funktion der Bestrahlungszeit

4 Tagen für verschiedene zeitlich konstante Neutronenflußdichten dar. Die Kurven sind normiert auf den Wert 1 für das Aktivitätsverhältnis bei einer Bestrahlungszeit von 1 Tag. Aus der Abbildung ist zu ersehen, daß das Aktivitätsverhältnis zwischen einer Bestrahlungszeit von 1 Tag und 500 Tagen bei einer Neutronenflußdichte von $5 \cdot 10^{13}$ n/cm²s etwa um den Faktor 80 zunimmt. Mit steigender Bestrahlungszeit und wachsendem Abbrand sind die Kobalt-Linien im La-Untergrund einfacher quantitativ nachweisbar.

Abb. 3.9 zeigt die Abhängigkeit des Aktivitätsverhältnisses

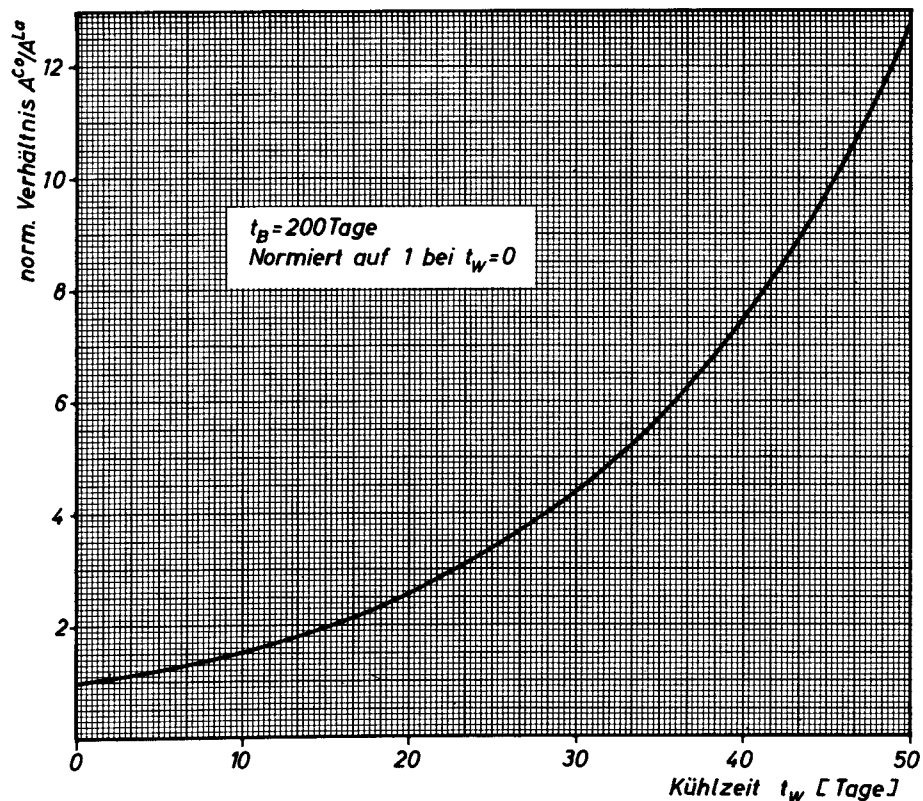


Abb. 3.9 Normiertes Aktivitätsverhältnis Co^{60}/La^{140} als Funktion der Kühlzeit

A^{Co}/A^{La} von der Kühlzeit t_w nach einer Bestrahlungszeit von 200 Tagen bei konstanter Neutronenflußdichte. Die Nor-

mierung wurde derart gewählt, daß am Ende der Bestrahlungszeit das Aktivitätsverhältnis den Wert 1 annimmt. Der Kurvenverlauf ist für alle Neutronenflußdichten bei Bestrahlungszeiten, für die die La^{140} -Aktivität ihr Maximum überschritten hat und sich mit der Ba^{140} -Aktivität nahezu im Gleichgewicht befindet, etwa gleich. Werden kleinere Bestrahlungszeiten betrachtet, ist die Zunahme des Aktivitätsverhältnisses mit der Kühlzeit schwächer. Aus der Abbildung geht hervor, daß bei geringer Zunahme der Wartezeit sich das Aktivitätsverhältnis nur wenig ändert. Spürbare Verbesserungen sind jedoch bei merklicher Vergrößerung der Wartezeit zu erreichen.

Zur Bestimmung des Abbrandes stabförmiger Brennelemente wurde in Abschnitt 2.4 die Ausnutzung der Aktivierung des im umhüllenden Edelstahl enthaltenen Co^{59} vorgeschlagen. Die Untersuchung des Gammaskpektrums von bestrahltem Edelstahl 4541 (Abb. 2.6) zeigt, daß in der Nähe der Co^{60} -Linien die Aktivitäten des Fe^{59} bei 1,0993 MeV (56 % Ausbeute) und 1,2916 MeV (43 % Ausbeute) sowie des Ta^{182} bei 1,121 MeV, 1,189 MeV, 1,222 MeV und 1,231 MeV auftreten. Diese haben jedoch von der Co^{60} -Linie bei 1,333 MeV einen Abstand von mehr als 40 keV und können von dem benutzten Spektrometer ohne Schwierigkeiten getrennt werden.

Aus Abb. 3.7 ist erkennbar, daß Zn^{65} mit der Gamma-Linie bei 1,1185 MeV als Fluenzdetektor benutzt werden kann. Das zu Zn^{65} aktivierbare Zn^{64} ist zu etwa 49 % im natürlichen Isotopengemisch enthalten. Die bei gleichzeitiger Bestrahlung des Zn^{67} auftretende Zn^{68} -Aktivität stört bei der Auswertung nicht, da sie niederenergetisch und kurzlebig ist. Auch die durch (n,p)-Reaktion entstehende Aktivität des Cu^{64} ist als Störung unbedeutend, da ihre Halbwertszeit klein (12,8 Stunden) und ihre Zerfallsenergie weit genug von der benutzten Linie entfernt ist.

Ebenso wie bei Co^{60} liegt auch die nutzbare Linie des Zn^{65} auf dem Compton-Untergrund des La^{140} . Qualitativ gilt für das Verhältnis der beiden Aktivitäten $\text{Zn}^{65}/\text{La}^{140}$ der für Kobalt angeführte Sachverhalt. Quantitativ ist die Situation wegen der um den Faktor 7,85 kleineren Halbwertszeit des Zn^{65} weniger günstig.

Die Linien des $\text{Ag}^{110\text{m}}$ von 1,385 MeV (25,8 % Häufigkeit) und von 1,505 MeV (13,9 % Häufigkeit) sind ebenfalls für die Auswertung im Spaltproduktspektrum ohne Störung verwendbar (Abb. 3.7). Die Linie bei 1,475 MeV ist ebenfalls ungestört, jedoch ist ihre Häufigkeit mit 4,24 % zu gering. Die Linien des $\text{Ag}^{110\text{m}}$ liegen außerhalb des linienfreien Bereiches zwischen 1,0 MeV und 1,37 MeV. Die Aktivitäten des neben dem mit 49 % im natürlichen Isotopengemisch des Silbers enthaltenen Ag^{109} stören wegen der geringen Energie den Nachweis der $\text{Ag}^{110\text{m}}$ -Linien nicht.

$\text{Ag}^{110\text{m}}$ kommt mit einer Ausbeute von $2 \cdot 10^{-4}$ % als Spaltprodukt vor [55]. Außerdem ist es das Aktivierungsprodukt des aus Pd^{109} (Spaltausbeute $3 \cdot 10^{-2}$ %) über $\text{Ag}^{109\text{m}}$ entstehenden Ag^{109} [55]. Die Gesamtspaltausbeute für $\text{Ag}^{110\text{m}}$ ist allerdings gering, so daß der dadurch entstehende Fehler innerhalb der Ungenauigkeit des Meßverfahrens liegt oder aber durch einen abbrandabhängigen Korrekturwert berücksichtigt werden kann.

Neben den Spaltprodukten können γ -Aktivitäten, die durch Neutroneneinfang in den Struktur- und Hüllmaterialien der Brennelemente oder in deren Verunreinigungen induziert werden, den quantitativen Nachweis der Fluenzisotope stören oder sogar verhindern.

Das bei MTR-Brennelementen auftretende Na^{24} aus der (n,α) -Reaktion des Al^{27} besitzt eine γ -Linie mit 1.3696 MeV, die etwa 15 keV von der 1.385 MeV-Linie des $\text{Ag}^{110\text{m}}$ entfernt ist. In einem Abstand von 19 keV von der 1.333 MeV-Linie des

Co^{60} befindet sich ein Peak des Sc^{48} bei 1.314 MeV. Titan ist als Verunreinigung im AlMgSi 0.8 enthalten; das Isotop Ti^{48} wird durch eine (n,p)-Reaktion mit einem effektiven Wirkungsquerschnitt von 3,3 mb zu Sc^{48} mit einer Halbwertszeit von 1,83 Tagen umgewandelt. Wegen des geringen Ti-Anteils im Strukturmaterial und wegen des kleinen Wirkungsquerschnitts ist die entstehende Aktivität nur schwach. Sowohl die Linie des Na^{24} als auch die des Sc^{48} können mit dem erwähnten Spektrometer unschwer von den Linien des Ag^{110m} und des Co^{60} getrennt werden. Eine ebenfalls schwache Störaktivität des Sc^{46} beeinflusst den Nachweis von Zn^{65} . Die durch eine (n,p)-Reaktion aus Ti^{46} mit einem Wirkungsquerschnitt von 10 mb entstehende Aktivität des Sc^{46} liegt mit 1.121 MeV 3 keV neben der 1.118 MeV-Linie des Zn^{65} .

Bei Verwendung von Zirkaloy als Hüllmaterial wird durch die Zr^{97} -Aktivität bei 1.120 MeV mit einer Halbwertszeit von 17 Stunden die Benutzung von Zn^{65} zumindest bei kurzen Kühlzeiten unmöglich. Titan verursacht ebenso wie bei MTR-Elementen eine schwache Aktivität des Sc^{48} , die jedoch nicht als Störung des Co^{60} -Nachweises angesehen werden kann.

Bei Brennelementen, die auf Graphitbasis aufgebaut sind, entstehen die bereits in Verbindung mit MTR-Brennelementen erwähnte schwache Sc^{46} -Aktivität, die den Nachweis von Zn^{65} stört, sowie die Sc^{48} -Aktivität, die eine Linie 19 keV neben der 1.333 MeV-Linie des Co^{60} besitzt. Beide sind Produkte der (n,p)-Reaktion in der Titan-Verunreinigung des Graphits. Eine vorhandene Natrium-Verunreinigung verursacht eine Na^{24} -Aktivität mit einer Linie 15 keV unterhalb der 1.385 MeV-Linie des Ag^{110m} . Die beiden letztgenannten Aktivitäten sind spektroskopisch ohne Schwierigkeiten von den Linien der Fluenzisotope zu trennen.

Alle anderen vorkommenden γ -Aktivitäten der Strukturmaterialien und ihrer Verunreinigungen haben in ihrer Energie einen genügend großen Abstand von den Linien der vorgeschlagenen

Fluenzdetektoren, so daß sie keinen Einfluß auf ihren Nachweis und die quantitative Bestimmung ihrer Aktivität haben.

4. Experimentelle Bestätigung mit Kobalt

Neben der theoretischen Untersuchung der Anwendbarkeit der Methode wurde das beschriebene Verfahren experimentell überprüft, um eine Bestätigung der Voraussagen zu erhalten. Für die Messungen wurde Co^{59} als Fluenzdetektor benutzt, da sich dieses Isotop auf Grund seiner Halbwertszeit, Lage und Störungsfreiheit der Gammalinien, Kenntnis der nuklearen Parameter und Temperaturbeständigkeit als weitaus am geeignetsten erweist.

4.1. Herstellung der Kobaltmonitore

Als Uranproben standen für die Untersuchungen einzelne coated particles vom Typ WM 120 mit einem mittleren U^{235} -Gehalt von 0,071 mg zur Verfügung. Zur Bestimmung der Menge der Beimischung von Co^{59} wurde berechnet, wieviel Kobalt erforderlich ist, um die gleiche Aktivität zu erzeugen, die bei der Spaltung von U^{235} für das Spaltprodukt Cs^{137} mit einer Spaltausbeute von 6,14 % entsteht. Für einen Abbrand von 2 % ergibt sich eine Beimischung von ca. 50 mg Kobalt pro Gramm U^{235} , d.h. etwa 5 Gewichtsprozent. Bezogen auf den U^{235} -Gehalt eines einzelnen coated particles ist danach eine Menge von etwa $4\text{ }\mu\text{g}$ Kobalt erforderlich.

Eine wässrige Lösung von CoCl_2 wurde derart angesetzt, daß in $1\text{ }\mu\text{l}$ Lösung $1\text{ }\mu\text{g}$ Kobalt enthalten war. Jeweils $4\text{ }\mu\text{l}$ Lösung wurden auf ein Stück Filtrierpapier aufgebracht. Durch eine getrennte Bestrahlung des verwendeten Filtrierpapiers im Reaktor wurde sichergestellt, daß keine die Auswertung des Kobalts störenden Aktivitäten entstehen. Das beschichtete Teilchen wurde in das kobalthaltige Filtrierpapier eingewickelt und in einem "Sandwich" zusammen mit einem Kobaltdraht als Fluenzdetektor zur Absolutauswertung und einem weiteren, $4\text{ }\mu\text{g}$ Kobalt enthaltenen Fil-

trierpapier bestrahlt. Das zusätzliche Filtrierpapier konnte bei der Messung dem coated particle hinzugefügt werden, um eine höhere Kobaltbeimischung zu simulieren. Die Bestrahlungen wurden im FRJ-1 durchgeführt, die absolute Auswertung der Aktivität des beigegebenen Fluenzdetektors im Zentralinstitut für Reaktorexperimente der Kernforschungsanlage Jülich.

Es wurden verschiedene Bestrahlungen vorgenommen, deren Fluß- und Fluenzwerte sowie die daraus errechneten Abbrände in Tabelle 4.1 aufgeführt sind.

Tabelle 4.1

Bestr. Nr.	thermische Neutronenfluß- dichte [n/cm ² s]	thermische Fluenz [n/cm ²]	berechneter Abbrand [%]
B 9014	4,65 · 10 ¹³	1,67 · 10 ¹⁹	1,129
B 9015	1,08 · 10 ¹³	9,31 · 10 ¹⁸	0,631
B 9016	3,31 · 10 ¹³	4,27 · 10 ¹⁹	2,862
B 9415	4,69 · 10 ¹³	1,62 · 10 ¹⁹	1,096

4.2. Identifizierung der Kobaltbeimischung im Spaltproduktspektrum

Mit dem in Abschnitt 3.1 beschriebenen Halbleiterspektrometer wurde das Gammaspektrum der zusammen mit 4 µg Kobalt bestrahlten coated particles ausgemessen.

Abb. 4.1 zeigt den interessierenden Ausschnitt des 93,5 Stunden nach Bestrahlungsende aufgenommenen Spektrums der Bestrahlung B 9016. Deutlich sind die beiden Co⁶⁰-Linien zu identifizieren und ohne Störung durch Nachbarlinien auswertbar. Die Meßzeit betrug 1,5 Stunden. Die lange Meßzeit

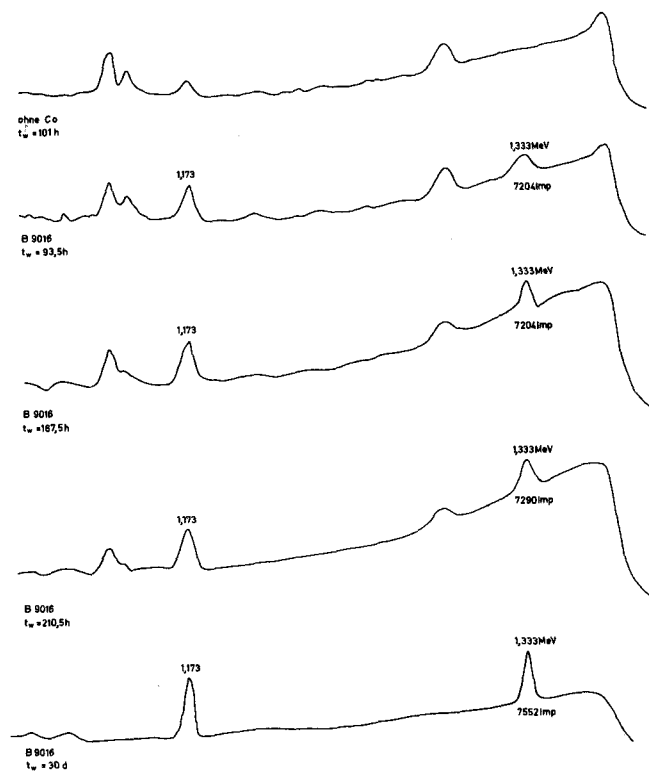


Abb. 4.1 Ausschnitt aus dem Spaltproduktspektrum mit Kobaltbeimischung zu verschiedenen Zeiten nach Bestrahlungsende

war notwendig, da zur Eichung der Apparatur die im Vergleich zum coated particle weitaus aktiveren Kobaltmonitordrähte benutzt wurden. Dadurch wurde der erforderliche Abstand zwischen Probe und Detektor festgelegt, bei dem die Zählrate noch in den für einen Nachweis der Aktivität nötigen Grenzen blieb. Im gleichen Abstand wurde die Messung der Spaltproduktspektren mit Kobaltbeimischung durchgeführt. Das benutzte Spektrometer war in der Lage, bezogen auf den mittleren Kanal des Analysators, im Maximum eine Impulsrate von etwa 10 kHz zu verarbeiten.

Zur Gegenüberstellung ist in Abb. 4.1 das Spaltproduktspektrum ohne Kobaltbeimischung dargestellt. Fluenz und Abklingzeit sind für beide Proben, mit und ohne Kobalt, etwa gleich. Weitere Ausschnitte des Spektrums zeigen die Co^{60} -Linien im Spaltproduktspektrum der Bestrahlung B 9016 bei Abklingzeiten von mehr als 100 Stunden. Die mit wachsender Ab-

Abklingzeit steigende Nachweismöglichkeit ist beim Vergleich der Spektren zu erkennen. Die Darstellungen beziehen sich auf einen Abbrandwert von 2,86 %.

Abb. 4.2 zeigt die interessierenden Bereiche von Spaltproduktspektren mit Co^{60} für verschiedene Abbrandwerte. Daneben sind

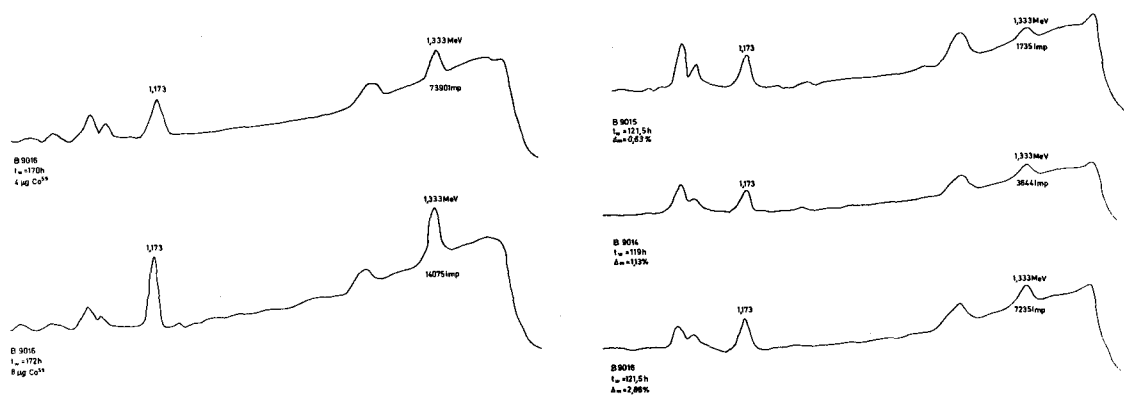


Abb. 4.2 Ausschnitt aus dem Spaltproduktspektrum bei verschiedener Kobaltbeimischung und verschiedenem Abbrandzustand

die gleichen Spektralbereiche für verschiedene Kobaltzugaben bei gleichem Abbrand dargestellt. Bei beiden Gruppen ist die mit steigendem Abbrand und wachsender Kobaltbeimischung größer werdende Linienintensität der Co^{60} -Linien zu erkennen. Die totzeitkorrigierten Impulszahlen der 1,333-MeV-Linie sind jeweils angegeben.

In allen Spektren mit Abklingzeiten unter 200 Stunden ist bei 1,3696 MeV eine Linie zu erkennen, die von Na^{24} herührt, das bei der (n, α) -Reaktion des Al^{27} mit einer Halbwertszeit von 15 Stunden entsteht. Die Aktivität bildet sich in der Al-Umhüllung, in die die coated particles mit dem Filtrierpapier bei der Bestrahlung verpackt wurden. Die Linie stört den Nachweis der Co^{60} -Linien nicht. Diese Feststellung ist von besonderer Bedeutung, da bei einer Bei-

mischung von Kobalt in der chemischen Verbindung des Kobaltaluminats diese Aktivität bei der Bestrahlung ebenfalls entsteht.

Die in den dargestellten Spektren auftretenden Co^{60} -Linien liegen wegen der niedrigen Abbrände an der Grenze der Nachweismöglichkeit. Bei höheren Abbränden wird der Nachweis immer einfacher wegen des im Verhältnis zur Kobaltaktivierung abnehmenden Untergrundes (Abschnitt 3.2). Eine quantitative Bestimmung der Linienintensität über einen Untergrund ist dann möglich, wenn die Linienhöhe über dem Untergrund größer als die dreifache Streubreite des Untergrundes ist. Diese Bedingung ist bei allen gezeigten Spektren erfüllt.

4.3. Eichung der Meßapparatur

Das Spektrometer wurde mit den bei den Bestrahlungen aktivierten und absolut ausgemessenen Fluenzdetektoren geeicht. Die Detektoren bestanden aus Kobaltdrähten mit einem Gewicht von 1,13 mg. Aus dem gesamten Co^{60} -Spektrum wurde die Intensität der 1,333 MeV-Linie durch Peakintegration und Subtraktion des Untergrundes relativ bestimmt. Als Untergrund wurde der Inhalt des Trapezes angesehen, das von den die Integrationsgrenzen bildenden Kanälen und der geradlinigen Verbindung zwischen den zugehörigen Kanalinhalt über der Nulllinie aufgespannt wird. Die Intensitätsmessung wurde für drei Drähte in einem festen Abstand zwischen Probe und Detektor durchgeführt. Die Totzeitkorrekturen der gesamten Anordnung wurden nach der 2-Präparate-Methode bestimmt und auf die Meßwerte angewendet.

Als Ergänzung zu den Messungen mit dem Vielkanalanalysator wurden Aktivitätsbestimmungen mit einem Einkanalanalysator durchgeführt. Zu diesem Zweck wurde der interessierende Bereich des Spektrums in der Umgebung der 1,333 MeV-Linie

mit einem Biased Amplifier nochmals um den Faktor 20 verstärkt, um durch Verbreiterung des Diskriminatorfensters die Langzeitstabilität der gesamten Anlage zu verbessern. An den Ausgang des Biased Amplifiers wurde ein Einkanalanalysator mit nachfolgender Zähl- und Steuereinheit angeschlossen. Zur Feststellung der Lage der Co^{60} -Linie wurde der Einkanalanalysator mit kleiner Fensterbreite über den interessierenden Bereich des Spektrums gefahren. Anhand der so gewonnenen Gammalinie konnte die Einstellung der Diskriminatorschwellen im nahezu konstanten Untergrund zu beiden Seiten der Linie festgelegt werden. Die Einstellung (Abb. 4.3) wurde so gewählt, daß bei

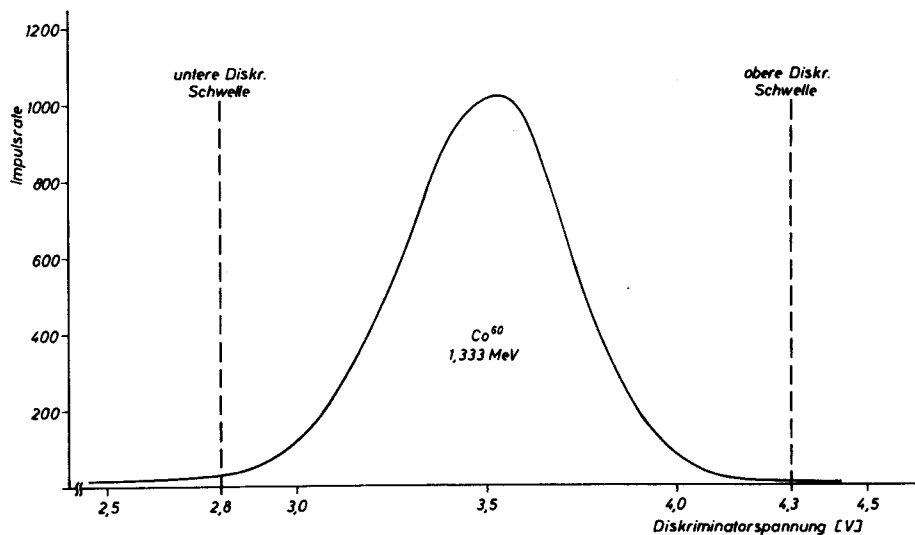


Abb. 4.3 Einstellung des Einkanalanalysators auf die 1.333 MeV Linie des Co^{60}

einer durch Schwankung der Gesamtverstärkung verursachten Lageänderung der Linie im Diskriminatorfenster um $\pm 0,3$ V eine Zählratenschwankung von weniger als ± 3 % auftrat. Ein zweiter Einkanal Diskriminator wurde zur Messung des Untergrundes auf den Spektrumsbereich zu beiden Seiten unmittelbar neben der Linie eingestellt. Die Fensterbreite beider Analysatoren war identisch. Aus den in Bezug auf Totzeitverluste korrigierten Zählraten für die Linie und für den Mittelwert der beiden Untergrundmessungen wurde die Differenz gebildet und damit die Intensität ermittelt. Für die Meßanordnungen wurde bei den drei benutzten Kobaltdrähten bei einem festen Abstand zwischen Probe und Detektor eine Übereinstimmung der Eich-

faktoren von $\pm 2,7 \%$ erreicht. Durch die relative Eichung der Apparatur konnten alle Fehlereinflüsse durch Geometrieeffekte und Selbstabsorption bei der Messung des Abbrandes eliminiert werden.

4.4. Vergleichsmessung zur Abbrandbestimmung

Mit der geeichten Apparatur wurde die Aktivität des mit den coated particles bestrahlten Kobalts ermittelt. Durch Bestimmung der integrierten Zählrate aus dem Gesamtspektrum sowie aus der Messung mit den beiden Einkanalanalysatoren wurde unter Berücksichtigung der Totzeitverluste sowie nach Abzug des Untergrundes die Linienintensität der 1.333 MeV Co^{60} -Linie festgestellt. Das berechnete Gewichtsverhältnis der als Monitore bestrahlten Kobaltdrähte zu der $4\text{ }\mu\text{g}$ -Beimischung ergab den Wert 282,5. Die bei der Messung der Monitordrähte und der Co^{60} -Linie aus den Spaltproduktspektren gefundenen Aktivitätsverhältnisse ergaben Werte, die in Tabelle 4.2 dargestellt sind.

Tabelle 4.2

Bestr. Nr.	$\frac{\text{Akt. Monitor}}{\text{Akt. } 4\text{ }\mu\text{g Co}}$	Abweichung von 282,5
B 9014	216,90	- 23 %
B 9015	256,57	- 9 %
B 9016	272,28	- 4 %

Die Abweichungen werden durch verschiedene Fehlerquellen verursacht. Die Absolutbestimmung der Aktivität der Kobaltdrähte weist eine Fehlerbreite von $\pm 5 \%$ auf. Die zur Herstellung der $4\text{ }\mu\text{g}$ -Kobaltbeimischungen benutzten $1\text{ }\mu\text{l}$ -Pipetten besitzen eine Ungenauigkeit von $\pm 10 \%$. Der benutzte ADC wird mit

variabler Totzeit betrieben, die von der relativen Häufigkeit der Impulse in den einzelnen Kanälen abhängt. Die Totzeitbestimmung wurde mit einem reinen Co^{60} -Strahler durchgeführt, während zur eigentlichen Messung das Spaltproduktspektrum mit völlig anderer relativer Energieverteilung benutzt wurde. Dadurch ergibt sich für die Totzeitkorrektur eine weitere Unsicherheit.

Die Abbrandmessungen durch Bestimmung der Co^{60} -Aktivität wurden mehrmals zwischen 120 und 300 Stunden nach Bestrahlungsende vorgenommen. Die Übereinstimmung der Meßergebnisse für verschiedene Abklingzeiten lag im Bereich von $\pm 5\%$. Die Bestrahlung B 9015 wurde als Bezugsstandard gewählt. In Abhängigkeit davon wurden die Aktivitäten der einzelnen Proben und daraus die Fluenzen bestimmt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.3 aufgeführt. Die angegebenen Werte gelten für eine Abklingzeit von 130 Stunden.

Tabelle 4.3

Bestr. Nr.	Fluenz (Monitor) [n/cm ²]	Fluenz (Isotop) [n/cm ²]	Abweichung [%]	gemessener Abbrand [%]
B 9014	$1,67 \cdot 10^{19}$	$1,95 \cdot 10^{19}$	+ 16,8	1,32
B 9015	$0,931 \cdot 10^{19}$	$0,931 \cdot 10^{19}$	Bezugswert	Bezugswert
B 9016	$4,27 \cdot 10^{19}$	$3,900 \cdot 10^{19}$	- 8,7	2,63
B 9415	$1,43 \cdot 10^{19}$	$1,381 \cdot 10^{19}$	- 3,5	0,94

Verglichen mit den Abbrandwerten in Tabelle 4.1 gelten für die Abbrände die gleichen Abweichungen, wie sie für die Fluenzen angegeben sind. Im Bereich geringer Abbrände bewirkt der Fehler in der Fluenzbestimmung etwa den gleichen Fehler bei der Abbrandangabe. Mit wachsendem Abbrand nimmt der Fehler im Abbrandwert gegenüber dem Fehler in der Fluenzbestimmung stetig ab. Abb. 4.4 stellt das Verhältnis des Abbrandfehlers zum Fluenzfehler in Abhängigkeit von der Größe

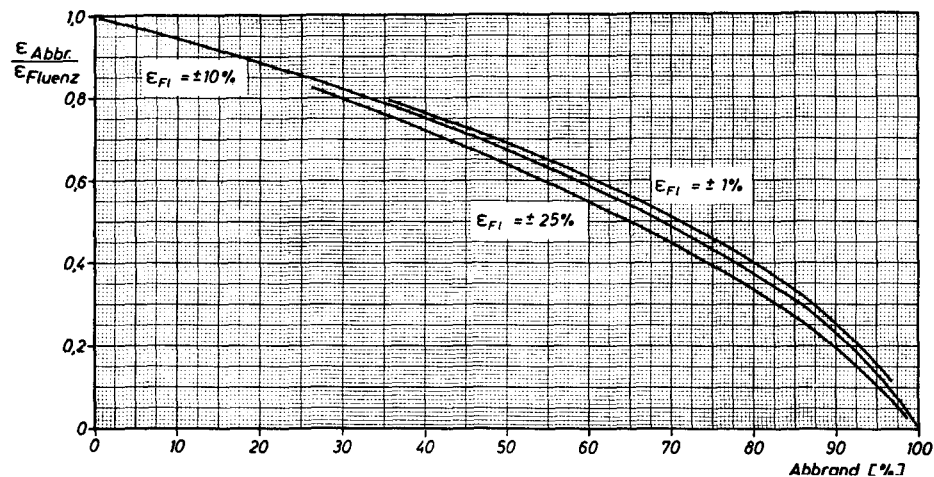


Abb. 4.4 Auswirkung des Fluenzfehlers auf den Abbrandfehler in Abhängigkeit vom Abbrandwert

des Abbrandwertes dar. Deutlich ist die Abnahme dieses Verhältnisses bei wachsenden Abbränden zu erkennen. Die Auftragung gilt streng für positive Fluenzfehler. Bei negativen Abweichungen in der Fluenzangabe ist das Verhältnis von Abbrandfehler/Fluenzfehler geringfügig zu größeren Werten verschoben. Bei einem Abbrand von etwa 65 % wirkt sich ein Fehler in der Fluenzbestimmung nur etwa zur Hälfte auf den Abbrandfehler aus.

Die relativ großen Ungenauigkeiten bei der hier durchgeführten Bestimmung des Abbrandes nach der geschilderten Methode sind nicht verfahrensspezifisch, sondern resultieren aus apparativen Unzulänglichkeiten, Fehlern bei der absoluten Fluenzbestimmung der Kobaltdrähte, die als Bezugswert angenommen wurden, sowie aus Fehlern bei der Herstellung der $4_{\mu g}$ -Mengen für die Beimischungen. Daneben waren die Bestrahlungszeiten in Größen, die wegen des Untergrundverhaltens (Abschnitt 3.2) und der bei hohen Abbränden im Verhältnis zur Untergrundaktivität wachsenden Co^{60} -Aktivität durchaus ungünstige Verhältnisse darstellten. Das Verfahren ist bei großen Ab-

bränden weit besser und mit größerer Genauigkeit anwendbar als bei kleinen. Werte von 2 % Abbrand sind als untere Nachweisgrenze anzusehen, wenn die Messung nach kurzer Abklingzeit durchgeführt werden soll. Dabei ist zu bedenken, daß die Messung derart kleiner Abbrandwerte wenig interessant ist und selten gefordert wird.

Um die bestrahlten Proben in den zur Verfügung stehenden Labors noch handhaben zu können, mußten die Abbrandbestimmungen an der Grenze der Nachweismöglichkeit des Verfahrens durchgeführt werden. Unter diesen Umständen kann die durchgeführte Abbrandbestimmung durchaus die Anwendbarkeit der Methode demonstrieren.

Eine Überprüfung der erzielten Abbrandergebnisse durch eine chemische Bestimmung der Spaltproduktmenge liefert nur bei gleichzeitiger Bestimmung der Rest- U^{235} -Menge ein brauchbares Ergebnis, da der Unterschied im U^{235} -Gehalt einzelner coated particles beträchtlich sein kann. Eine solche umfangreiche chemische Analyse konnte jedoch nicht durchgeführt werden.

Ebenso mußte auf eine Bestimmung des Abbrandwertes durch spektroskopische Bestimmung der Cs^{137} -Aktivität verzichtet werden, da bei den genannten geringen Abbränden eine solche Abbrandbestimmung ebenfalls mit großen Fehlern behaftet und somit nicht als Vergleichswert zu benutzen ist.

5. Anwendung auf Kugelhaufenreaktoren

Ein äußerst günstiges und aussichtsreiches Anwendungsgebiet für die Abbrandbestimmung durch irreversible Beimischung aktivierbarer Isotope ist der Hochtemperaturreaktor mit kugelförmigen Brennelementen. Durch eine häufige Überprüfung der Brennelemente auf ihren Abbrandzustand läßt sich eine günstige Ausnutzung des Spaltstoffes erreichen sowie der Austritt der Spaltprodukte durch Zerstörung der Partikelbeschichtung bei zu hohen Abbrandwerten vermeiden. Neben der Bestimmung des Zuladeortes im Reaktorkern wird die Ausnutzung des Th^{232} und damit der Konversions- bzw. Brutvorgang optimiert. Nur so können alle Vorteile dieses Brennelementtyps voll realisiert werden.

5.1. Kühlzeit nach Bestrahlungsende

Im Kugelhaufen bewegen sich die einzelnen kugelförmigen Brennelemente auf verschiedenen Bahnen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten, je nachdem ob sie in der Mitte des Kerns oder am Kernrand zugeladen worden sind. Die mittlere Durchlaufzeit im THTR beträgt etwa 183 Tage [57]. Danach münden die Kugeln ins Abzugsrohr. Die Messung muß kurz nach dem Ende der Bestrahlung durchführbar sein, da sich die Kugeln nach Verlassen des Reaktorkerns nur etwa 4 Tage im Kugelabzugsrohr bei verschwindender Neutronenflußdichte aufhalten. Spätestens nach Ablauf dieser Zeit muß die Messung stattfinden, nach deren Ergebnis die Kugeln dann wieder in bestimmte, vom Abbrandzustand abhängige Zonen des Kerns gelangen. Diese vorgegebene Kühlzeit von etwa 100 Stunden wurde bei den Vergleichsmessungen, über die im Abschnitt 4 berichtet wurde, berücksichtigt.

Die mittlere Gesamteinsatzzeit der Kugeln im Reaktor beträgt etwa 1000 Tage. Dieser Zeitraum kann bei Verwendung

von Kobalt als Fluenzdetektor bei einer Halbwertszeit von 5,27 Jahren (1920 Tage) sicher überwacht werden.

5.2. Art der Beimischung zum Brennstoff

Die Beimischung eines Fluenzisotops zum Brennelement der Hochtemperaturreaktoren muß neben den in Abschnitt 2.2 aufgeführten Bedingungen weitere Anforderungen erfüllen, die speziell durch die Art des THTR-Reaktors gestellt werden.

Hochtemperaturreaktoren werden bis zu Brennstofftemperaturen von etwa 1200 °C betrieben. Daraus erhebt sich die Forderung nach einer großen Temperaturbeständigkeit des Fluenzisotops, das auch bei diesen Temperaturen auf Grund des zur Kugeloberfläche bestehenden Temperaturgefälles nicht herausdiffundieren darf. Zum ersten würde dadurch eine genaue Abbrandbestimmung unmöglich, zum anderen würde der Helium-Kühlkreislauf unzulässig stark mit einem langlebigen radioaktiven Strahler kontaminiert.

Als Konsequenz der bisherigen Ausführungen hat sich unzweifelhaft Kobalt als der Fluenzdetektor erwiesen, der am besten für die Abbrandbestimmung nach dem beschriebenen Verfahren geeignet ist. Zur Vermeidung von Schwierigkeiten durch das im THTR auftretende große Temperaturgefälle wird Kobalt in der Verbindung Kobaltaluminat ($\text{Co}(\text{AlO}_2)_2$) - auch unter der Bezeichnung Thenardsblau bekannt - in speziellen beschichteten Teilchen, die eine Umhüllung aus Siliziumkarbid und eine zweite aus pyrolytischem Kohlenstoff besitzen, in die Brennstoffkugel gegeben. Kobaltmetall sowie Kobaltkarbid diffundieren leicht durch die Ummantelung hindurch. Die chemische Verbindung des Kobaltaluminats stabilisiert jedoch bei hinreichendem Aluminiumoxyd-Überschuß das Kobaltoxyd, so daß eine Bildung von Karbid ausgeschlossen und somit eine Diffusion wirksam verhindert wird [58]. Die durch eine

(n, α)-Reaktion im Al^{27} entstehende Aktivität des Na^{24} mit einer Energie von 1.3696 MeV stört den Nachweis der Co^{60} -Aktivitäten nicht. Mit dieser Verfahrensweise kann Kobalt dem Brennstoff sicher und in genauer Dosierung zugegeben werden.

Die Menge Kobalt, die in einem Spezialteilchen enthalten ist, wird so gering bemessen, daß etwa 1000 Kobalt-Teilchen, d.h. etwa 10 % der Brennstoff-Teilchen, zur Erreichung einer vorgeschriebenen Beimischung erforderlich sind. Die in Form von coated particles in Kugelelemente eingefüllte Brennstoffmenge läßt sich mit einer Genauigkeit von ± 1 % bestimmen. Mit einer ähnlichen Genauigkeit ist auch die Zugabe des Fluenzmonitors möglich, wenn er ebenfalls in kleinen Mengen, verteilt in ummantelte Teilchen, verabreicht wird.

5.3. Erforderliche Menge der Beimischung

Die erforderliche Menge der Kobaltbeimischung zum Brennstoff wird von den unterschiedlichsten Einflüssen bestimmt. Die Kobalt-Aktivität soll bei vorgegebener Kühlzeit nach Bestrahlungsende quantitativ im Spaltproduktuntergrund feststellbar sein, darf jedoch auf Grund der großen Halbwertszeit die Gesamtaktivität des Brennelements für die Aufbereitung nicht wesentlich erhöhen. Als tolerabler Wert kann eine Vergrößerung der Aktivität um 10 % angesehen werden, der ohne Pönalitäten annehmbar ist. Andererseits ist die Beimischung so groß zu wählen, daß mit einer Meßzeit von etwa 10 s eine quantitative Bestimmung eines vorgegebenen Mindestabbrandes durchführbar ist. Die Reaktivitätsabsorption wächst mit dem Kobaltzusatz, womit die Größe der Beimischung nach oben begrenzt wird.

Unter Berücksichtigung dieser Faktoren ist eine Menge der Beimischung zu bestimmen, die den günstigsten Kompromiß darstellt.

In erster Näherung wurde bei der Festlegung der Zugabemenge von der Tatsache ausgegangen, daß von verschiedenen Autoren eine Abbrandbestimmung mit Cs^{137} bei langer Wartezeit nach dem Ende der Bestrahlung mit genügender Genauigkeit durchgeführt wurde. Daher wurde abgeschätzt, welche Menge Co^{59} , Zn^{64} und Ag^{109} dem Brennstoff beigegeben werden muß, um die gleiche Linienintensität zu erzeugen, die von der Cs^{137} -Photolinie erreicht wird. Dabei wurden unterschiedliche Abbrandzustände zwischen 0 % und 99 % angenommen.

Bei der Abschätzung wurde weder die unterschiedliche Nachweiswahrscheinlichkeit des $\text{Ge}(\text{Li})$ -Detektors zwischen der 661,6 keV-Linie des Cs^{137} und den Linien der Fluenzdetektoren oberhalb 1 MeV, noch die verschieden starke Störung durch den Untergrund berücksichtigt. Da beide Einflüsse einen entgegengesetzten Effekt bewirken, wurde angenommen, daß sie sich nahezu aufheben.

Bei der Spaltung von U^{235} (Anfangsmenge 1 g) entsteht eine Cs^{137} -Aktivität von

$$A^{\text{Cs}} = \alpha^{\text{Cs}} \cdot \lambda^{\text{Cs}} \cdot F \quad (14)$$

F ist die abbrandabhängige Zahl der Spaltungen, α^{Cs} und λ^{Cs} sind die Spaltausbeute und Zerfallskonstante von Cs^{137} . Die Linienausbeute der 661,6 keV-Linie wurde mit 100 % (Literaturwert 82,4 %) angenommen. Für den gleichen Abbrandzustand errechnet sich nach Gleichung (3) die Fluenz I und damit die Co^{60} -Aktivität zu

$$A^{\text{Co}} = \sigma^{\text{Co}} \cdot N_0 \cdot \lambda^{\text{Co}} \cdot I \quad (15)$$

N_0 bedeutet die Anzahl der Kobaltkerne, σ^{Co} und λ^{Co} den Wirkungsquerschnitt von Co^{59} und die Zerfallskonstante von Co^{60} . Mit der Loschmidtzahl L und dem Atomgewicht G^{59} ergibt sich

unter Berücksichtigung der großen Halbwertszeit die Menge der Beimischung zu

$$m^{Co} = \frac{\alpha^{Cs} \cdot F \cdot \lambda^{Cs} \cdot G^{59}}{\sigma^{Co} \cdot \lambda^{Co} \cdot L \cdot I} \quad (16)$$

Die berechnete Menge ist auf 1 g U^{235} bezogen.

Das Ergebnis der Auswertung von Gleichung (16) für Kobalt ist in Abb. 5.1 dargestellt. Es zeigt sich, daß die erforderliche

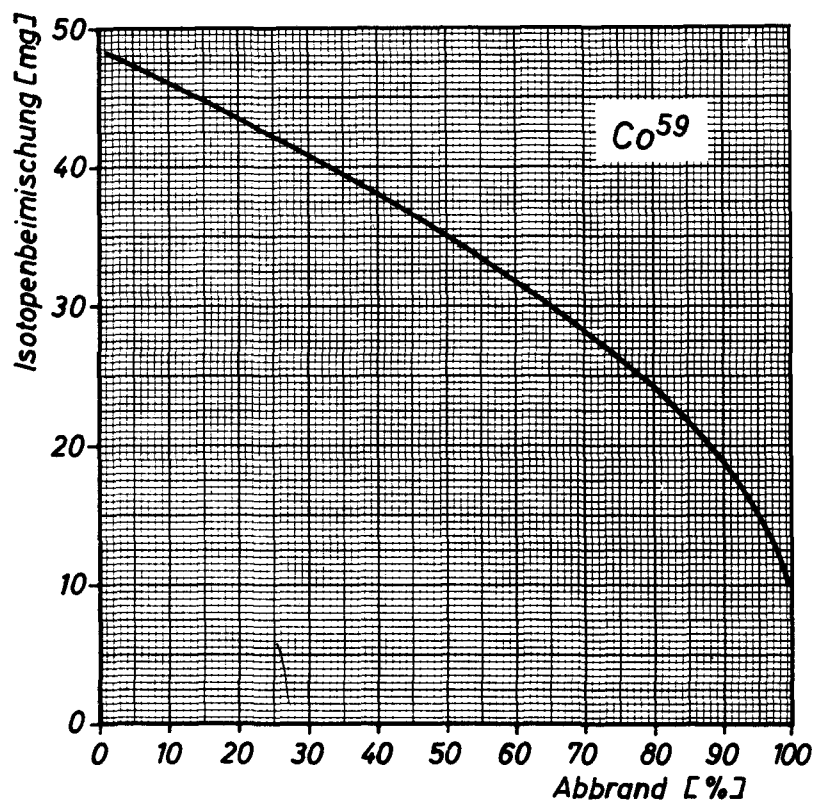


Abb. 5.1 Abhängigkeit der Co^{59} -Beimischung vom Abbrand (bezogen auf die bei der Spaltung entstehenden Cs^{137} -Aktivität)

Beimischung mit wachsendem Abbrand kleiner wird. Für einen Abbrandwert von 5 %, der als untere Nachweisgrenze angesetzt werden soll, ergibt sich für Kobalt eine Beimischung von 4,7 % des U^{235} -Einsatzes. Die Vergleichswerte für Zn^{65} sind unter Berücksichtigung der Isotopenhäufigkeit sowie der Linienausbeute 258 %, für Ag^{110m} sind bei Benutzung der Linie bei 1,385 MeV 157 % erforderlich.

Bei den in Abschnitt 4 beschriebenen Messungen wurde die so berechnete Beimischung von etwa 5 % Co^{59} verwandt.

5.4. Anforderungen an die Meßzeit

Bei der Anwendung der Methode auf Kugelbrennelemente wird die Einhaltung einer äußerst kleinen Meßzeit gefordert. Im Durchschnitt werden pro Stunde etwa 154 Kugeln umgewälzt, im Maximum wird eine Umwälzleistung von 500 Kugeln pro Stunde erreicht. Bei Benutzung nur einer einzigen Abbrandmeßanlage steht damit bei maximaler Umwälzgeschwindigkeit eine Meßzeit von weniger als 10 Sekunden zur Verfügung.

Die aus der Abbrandinformation abgeleitete Entscheidung über die Weiterverwendung der Brennstoffkugel wird von einem Computer getroffen. Die Verwendung mehrerer gleichartiger Meßanlagen im Parallelbetrieb vergrößert die zur Messung zur Verfügung stehende Zeit um den Faktor der eingesetzten Anlagen, verkompliziert jedoch gleichzeitig die Auswerte- und Steuereinheit. Daher wird die Einhaltung einer Meßzeit von 10 s angestrebt.

Zur Erreichung einer hohen Genauigkeit wird eine gute Zählstatistik gefordert, die mit einer Impulszahl von 10.000 in 10 s für die Co^{60} -Linie erreicht wird.

In Tabelle 5.1 sind die für die mittlere und maximale Kugelleistung des THTR entstehende Kugelaktivität für eine Bestrahlungszeit von etwa 1000 Tagen angegeben. Zum Vergleich

dazu werden die Co^{60} -Aktivitäten, ebenfalls für eine Bestrahlungszeit von 1000 Tagen, für die Werte der mittleren Neutronenflußdichte von $2 \cdot 10^{13}$, $5 \cdot 10^{13}$ und $1 \cdot 10^{14}$ n/cm²s aufgeführt.

Tabelle 5.1

Kugel- leistung THTR [57] [kW]	Aktivität/ g U^{235} [56] $t_B=1000$ Tage [Ci]	Aktivität/50 mg Co^{59} [Ci]		
		$\phi \cdot t = 8,64 \cdot 10^{21}$ n/cm ²	$4,32 \cdot 10^{21}$ n/cm ²	$1,73 \cdot 10^{21}$ n/cm ²
1,1	550	15,5	7,8	3,0
3,9	1900	15,5	7,8	3,0

Bei der maximalen Kugelleistung von 3,9 kW kann bei einer Fluenz von $8,64 \cdot 10^{21}$ n/cm² eine Beimischung von 610 mg Kobalt zugelassen werden, um eine Aktivitätserhöhung von 10 % zu erreichen. Bei mittlerer Kugelleistung von 1,1 kW kann bei einer Fluenz von $4,32 \cdot 10^{21}$ n/cm² eine Beimischung von 353 mg zur gleichen Aktivitätserhöhung geduldet werden. Das bedeutet eine Vergrößerung der bei den Messungen benutzten Menge um den Faktor 12,3 bzw. 7,1. Bei einer Fluenz von $8,64 \cdot 10^{21}$ n/cm² kann bei der mittleren Kugelleistung eine Menge von 177 mg beige-mischt werden, also eine um den Faktor 3,5 vergrößerte Menge.

Die in Abschnitt 4 beschriebenen Vergleichsmessungen wurden mit einer Meßzeit von 1000 s durchgeführt. Dabei ergeben sich für die Linie mit Untergrund etwa 14.000 Impulse, für den Untergrund alleine etwa 13.000 Impulse, also ein Linien/Untergrundverhältnis von 1:13. Für die Linie blieb damit eine Impulszahl von 1000. Diese Werte wurden nicht überschritten, um die Elektronik im Einkanalbetrieb nicht durch eine zu hohe Impulsrate zuzustopfen. Die Impulszahl reichte aus, um bei mehrmaliger Messung die Aktivität der Linie quantitativ zu bestimmen. Die Kobaltbeimischung war 5 % des Brennstoffeinsatzes, der Abbrand der Proben betrug 1 bis 2 %. Bei einem

Abbrand von ca. 80 % ist mit einer Aktivitätsvergrößerung des Kobalts und damit einer Zählratenerhöhung bei der Linie um etwa den Faktor 100 zu rechnen. Gleichzeitig verbessert sich bei einer mittleren Neutronenflußdichte von $5 \cdot 10^{13} \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ das Linien/Untergrundverhältnis bei einer Bestrahlungszeit von 500 Tagen um den Faktor 80 (Abb. 3.8), so daß es einen Wert von 6,2 annimmt. Die Gesamtaktivität wird bei langen Bestrahlungsdauern lediglich durch die langlebigen Spaltprodukte vermehrt. Bei Verwendung einer leistungsfähigeren Elektronik kann die Gesamtimpulsrate und damit die Impulsrate der Fluenzlinie um den Faktor 2 bis 3 vergrößert werden. Durch eine Erhöhung der Co^{59} -Beimischung um das 4-fache, was nach den Angaben im Anschluß an Tabelle 5.1 durchaus möglich ist, läßt sich eine Impulsrate von 1000 Imp./s für die Fluenzlinie erreichen. Damit kann die Abbrandbestimmung mit einer Meßzeit von 10 s bei einem statistischen Fehler von etwa 1 % durchgeführt werden.

Zu diesen Angaben ist noch eine Betrachtung der Leistungsfähigkeit von zur Zeit auf dem Markt befindlichen Analysatorsystemen erforderlich.

Wird für die Aktivität der Co^{60} -Linie eine Impulsrate von 1000 Imp./s erwartet, dann findet für die 10-fache Gesamtaktivität einer Brennstoffkugel die 10-fache Anzahl der Zerfälle statt. Von diesen verlaufen einige über eine Kaskade von Gammaenergien, so daß für einen Zerfall mehrere Photolinien auftreten. Im Detektor finden die drei bekannten Prozesse, Photoeffekt, Comptonstreuung und Paarbildung statt, wodurch für jede freigesetzte Gammaenergie mehrere Impulse im Detektor erzeugt werden. Wird ein mittlerer Linienverzweigungsfaktor für alle Zerfälle von 3 und ein Impuls-Gammaquant-Verhältnis von 2 angesetzt, so entstehen für die Gesamtaktivität der Kugel 60.000 Imp./s.

Nach den Angaben verschiedener Autoren [59,60] ist ein Ge(Li)-Detektor mit nachfolgender Spezialelektronik für hohe Zählraten in der Lage, bis zu 100.000 Imp./s nachzuweisen, ohne die Auflösung des Systems nennenswert zu verschlechtern. Nach neuesten Angaben können von Analog-Digital-Konvertern mit

einer festen Totzeit von $3\mu\text{s}$ bis zu 300.000 Imp./s verarbeitet und in einem Vielkanal- oder Einkanalanalysator mit Zähl-einheit registriert werden [61]. Damit ist es möglich, die Ausgangsimpulse von 3 Nachweiskanälen, bestehend aus Ge(Li)-Detektor, Vor- und Hauptverstärker, über einen Impulsstretcher mit Mischeinheit gleichzeitig auf den Analysator zu geben. Verstärkungsdifferenzen lassen sich durch eine Regelung eliminieren oder durch eine geeignete Wahl der Fensterbreite im Einkanalanalysator ausgleichen, da störende Nachbarlinien nicht existieren, die zur Ausnutzung der maximalen Energieauflösung zwingen. Die Zählrate wird damit um den Faktor 3 erhöht und bei günstigem Aufbau der Anordnung eine azimutale Mittelwertsbildung über die Kugelaktivität erreicht. Abb. 5.2 zeigt eine Anordnung zur Aufnahme des Gammaspektrums von Brennstoffkugeln mit Hilfe von 3 Nachweiskanälen.

Eine Testmessung mit einer Impulsrate von 32.000 Imp./s lieferte bei einem Aktivitätsverhältnis Spaltprodukte/ Co^{60} von 750:1 ein Impulsratenverhältnis von 10.000:1 ohne Pile up-Unterdrückung. Bei einer Verkleinerung des Aktivitätsverhältnisses auf 10:1 ergibt sich daraus ein Impulsratenverhältnis von etwa 130:1. Durch Optimalisierung der elektronischen Anlage ist eine weitere Verbesserung dieses Wertes zu erreichen. Für die Anwendung der Methode unter den genannten Anforderungen sind von apparativer Seite keine Schwierigkeiten zu erwarten.

Außerdem besteht die Möglichkeit, niederenergetische Gammaquanten, die ohnehin für die geschilderte Abbrandbestimmung unbedeutend sind, durch eine Bleiplatte von einigen Millimetern Dicke zwischen Brennstoffkugel und Detektor zu absorbieren, wodurch die Intensität der Co^{60} -Gammaquanten hoher Energie nur unerheblich geschwächt wird. Damit wird die Gesamtimpulszahl relativ zur Co^{60} -Impulszahl stark herabgesetzt und eine Überbelastung der Elektronik vermieden.

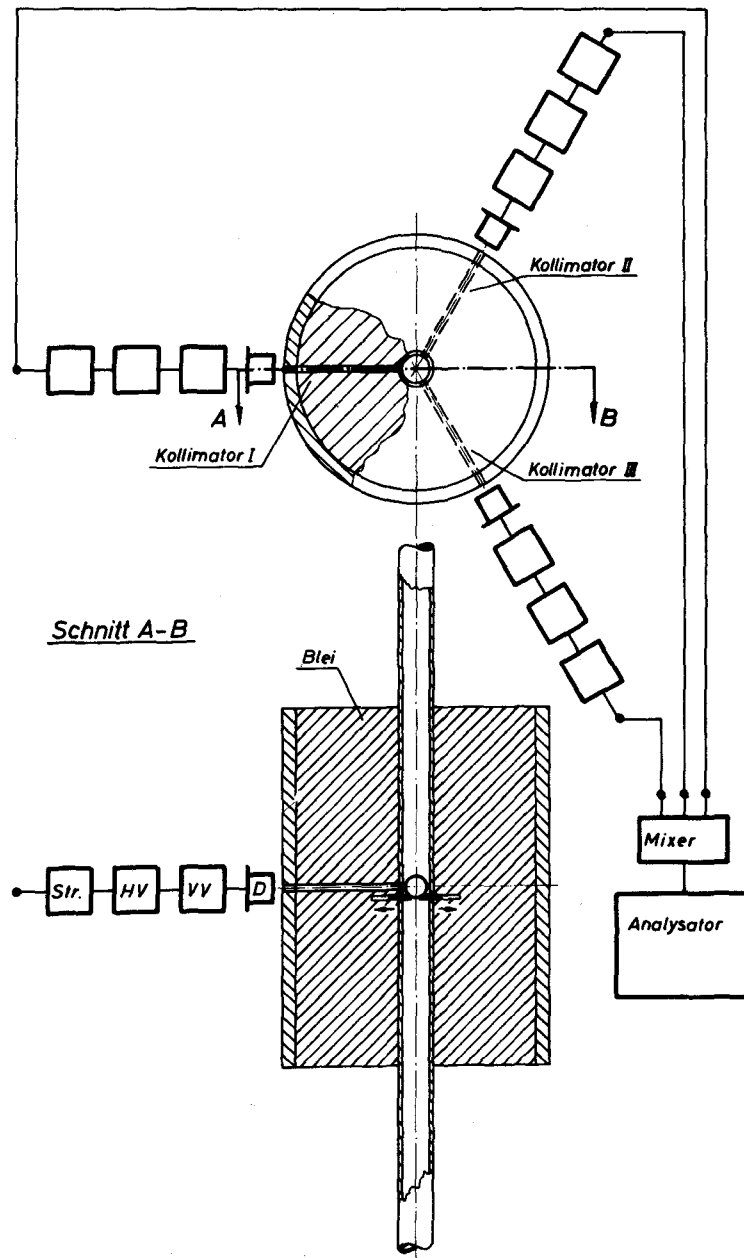


Abb. 5.2 Abbrandmeßvorrichtung mit 3 Nachweiskanälen

Abb. 5.3 zeigt die Wirkung eines 7 mm starken Bleiabsorbers zwischen Präparat und Detektor. Es ist deutlich zu erkennen, daß das relative Ansprechvermögen der erwähnten Anordnung für niedrige Energien um mehr als eine Größenordnung abnimmt, bei hohen Energien jedoch nur um etwa 15 % kleiner wird.

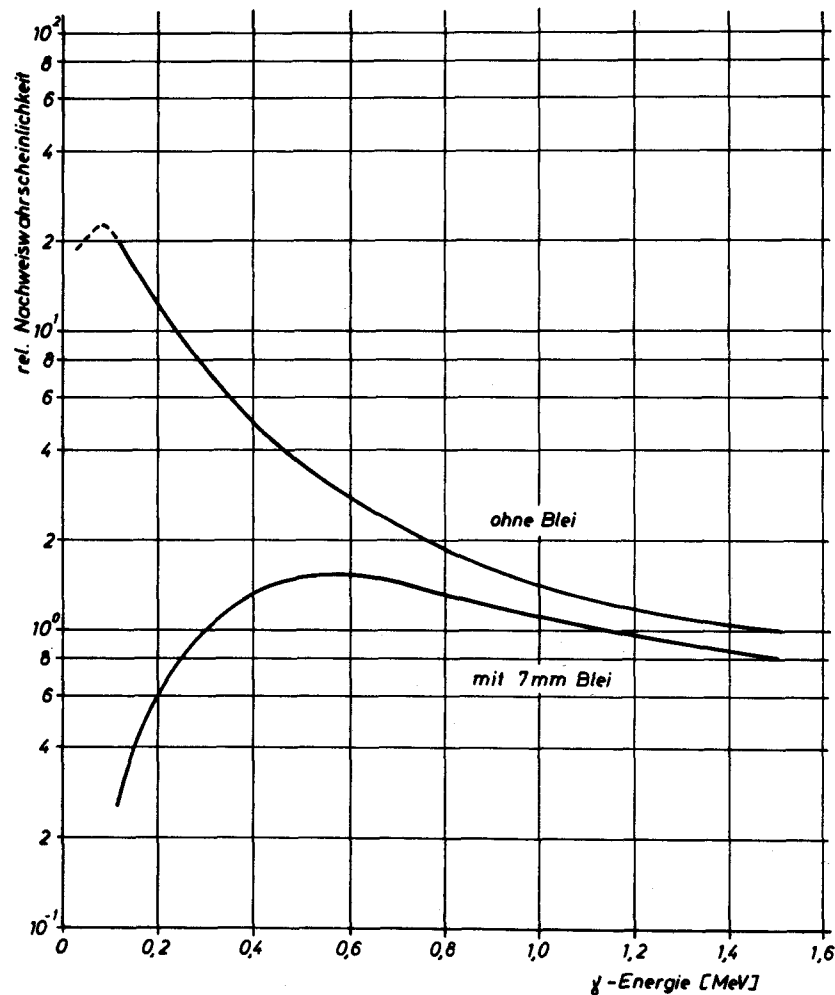


Abb. 5.3 Auswirkungen eines 7 mm dicken Bleiabsorbers auf das Ansprechvermögen eines Ge(Li)-Detektors

Die über den Energiebereich von 50 bis 1400 keV erstreckten Integrale der beiden Kurven ergeben ein Verhältnis von 1:0.208, bezogen auf das integrierte Ansprechvermögen ohne Bleiabsorber; das integrierte Ansprechvermögen nimmt durch den 7 mm dicken Bleiabsorber um 79,2 % ab.

5.5. Reaktivitätsabsorption

Eine Beimischung von 50 mg Co^{59} stellt wegen des Absorptionsquerschnittes von 37,4 barn einen zusätzlichen Neutronenabsorber dar, der durch Zugabe von Spaltstoff kompensiert wird.

Die Größe der entstehenden Reaktivitätsabsorption kann durch eine einfache Betrachtung abgeschätzt werden. Durch einen vorwiegend thermischen Absorber wird von den Größen, die die Multiplikationskonstante einer Reaktorordnung bestimmen, in erster Linie und fast ausschließlich die thermische Nutzung beeinträchtigt. In erster Näherung läßt sich als zusätzliche Reaktivitätsabsorption das Verhältnis der makroskopischen Absorptionsquerschnitte von Co^{59} und U^{235} im Gewichtsverhältnis 0.05:1 angeben.

$$\Delta g = \frac{\sigma_a^{\text{Co}} m^{\text{Co}} A^{\text{U}}}{\sigma_a^{\text{U}} m^{\text{U}} A^{\text{Co}}} \quad (17)$$

Gleichung (17) liefert für 50 mg Kobalt einen Wert für Δg von 1.09 %. Demnach wird für jeweils 5 Gewichtsprozent Kobalt, die im Mittel dem Brennstoff beigegeben werden, eine Reaktivitätsabsorption von etwa 1 % Δk zu erwarten sein.

Eine genauere Berechnung, die mit Hilfe des Digitalprogramms EREBUS [62] für das Erstcore des AVR-Reaktors in Jülich ausgeführt wurde, ergab für eine Beimischung von 100 mg Co^{59} pro Gramm U^{235} eine Reaktivitätsabsorption von 1.7 % Δk [63], was extrapoliert auf 50 mg Beimischung einen Wert von 0.85 % Δk liefert. Mit wachsender Beimischung steigt die Reaktivitätsabsorption etwa um den gleichen Faktor an.

5.6. Abhängigkeit der Abbrandbestimmung von der Bestrahlungsgeschichte

5.6.1. Problemstellung und Rechenmethode

Die Anwendung der beschriebenen Abbrandbestimmung auf Brennelemente der Kugelhaufenreaktoren stellt Forderungen an die nuklearen Daten des Fluenzdetektors, die durch die spezielle Art des Reaktortyps entstehen.

Die im Kugelkreislauf umlaufenden Brennelemente durchqueren den Reaktorkern auf unterschiedlichen Bahnen mit verschiedenen Geschwindigkeiten und in variablen Neutronenflußdichten. Da die Kugeln keine individuellen Unterscheidungsmerkmale besitzen, ist die Bestrahlungsgeschichte der einzelnen Brennelemente bei der Abbrandmessung völlig unbekannt.

Neben den Unterschieden durch variable Bahnen durch den Reaktorkern treten betriebsbedingte Bestrahlungsabläufe ein, die beim Abschalten des Reaktors oder durch Leistungssenkungen auf Teillast entstehen und sich den oben genannten Unterschieden überlagern.

Zur Feststellung, wie weit die Bestrahlungsgeschichte die Genauigkeit der Abbrandbestimmung durch Beimischung von Fluenzdetektoren beeinflußt, wurden Berechnungen durchgeführt, die sich auf Kobalt beziehen, das auf Grund der großen Halbwertszeit dazu am besten geeignet erscheint.

Für die Berechnung der Aktivität von Co^{60} ist ein System von Differentialgleichungen verantwortlich. Die Änderung der Menge der beigemischten Co^{59} -Kerne durch Neutroneneinfang wird durch die Gleichung

$$\frac{dN^{59}(t)}{dt} = - \sigma^{59} \phi_{th}(t) N^{59}(t) \quad (18)$$

dargestellt, in der σ^{59} die Summe der beiden Absorptionsquerschnitte, die zu Co^{60m} bzw. zu Co^{60} führen, ist. Die Wirkungsquerschnitte gelten für eine Neutronengeschwindigkeit von 2200 m/sec.

Die Änderung der gebildeten Co^{60} -Kerne resultiert aus der Aktivierung von Co^{59} durch Neutroneneinfang, durch radioaktiven Zerfall von Co^{60m} und Co^{60} sowie durch Abbrand zu Co^{61}

$$\frac{dN^{60}(t)}{dt} = \sigma_2^{59} \Phi_{th}(t) N^{59}(t) + \lambda^{60m} N^{60m}(t) - \sigma^{60} \Phi_{th}(t) N^{60}(t) - \lambda^{60} N^{60}(t) \quad (19)$$

Die Änderung der Co^{60m} -Kerne entsteht durch Aktivierung von Co^{59} durch Neutroneneinfang, durch radioaktiven Zerfall und durch Abbrand

$$\frac{dN^{60m}(t)}{dt} = \sigma_1^{59} \Phi_{th}(t) N^{59}(t) - \sigma^{60m} \Phi_{th}(t) N^{60m}(t) - \lambda^{60m} N^{60m}(t) \quad (20)$$

Bei der Auflösung dieses Gleichungssystems nach $N^{60}(t)$ werden folgende Vereinfachungen gemacht:

Das Produkt $\sigma^{60m} \Phi_{th}(t)$ wird gegen λ^{60m} vernachlässigt, da es selbst bei Neutronenflußdichten von 10^{14} n/cm²s bereits um Größenordnungen kleiner als λ^{60m} ist.
($\sigma^{60m} = 10^{-22}$ cm²; $\lambda^{60m} = 1,1 \cdot 10^{-3}$ sec⁻¹).

Für Bestrahlungszeiten von mehr als 1 Stunde hat sich für die Co^{60m} -Kerne ein Gleichgewichtszustand eingestellt, so daß $dN^{60m}(t)/dt$ als Null angesehen werden darf.

Die Auflösung des Gleichungssystems liefert

$$N^{60}(t) = \sigma^{59} N^{59}(0) e^{-\lambda^{60} t - \sigma^{60} \int_0^t \Phi_{th}(t') dt'} + \int_0^t \Phi_{th}(t') e^{\lambda^{60} t' + (\sigma^{60} - \sigma^{59}) \int_0^{t'} \Phi_{th}(t'') dt''} dt' \quad (21)$$

Aus der Anzahl der Co^{60} -Kerne ergibt sich die Aktivität zu

$$A^{60}(t) = \lambda^{60} N^{60}(t) \quad (22)$$

Aus der Aktivität $A^{60}(t)$ kann mit Gleichung (21) und Gleichung (22) ohne Angaben über den zeitlichen Flußdichteverlauf

nicht die Fluenz, d.h. $\int_0^t \phi_{th}(t') dt'$ berechnet werden. Die Annahme eines konstanten Neutronenflusses über die betrachtete Zeit liefert bereits den einfacheren Ausdruck

$$A^{60}(t) = \lambda^{60} \sigma^{59} N^{59}(0) \phi_{th} t \frac{e^{-\sigma^{60} \phi_{th} t} [e^{(\sigma^{60} - \sigma^{59}) \phi_{th} t} - e^{-\lambda^{60} t}]}{\lambda^{60} t + (\sigma^{60} - \sigma^{59}) \phi_{th} t} \quad (23)$$

Mit den Bezeichnungen

$$I_{th} = \phi_{th} \cdot t \quad (24)$$

und

$$\mathfrak{J} = \frac{e^{-\sigma^{60} I_{th}} [e^{(\sigma^{60} - \sigma^{59}) I_{th}} - e^{-\lambda^{60} t}]}{\lambda^{60} t + (\sigma^{60} - \sigma^{59}) I_{th}} \quad (25)$$

folgt aus (23) die einfache Form

$$A^{60}(t) = \lambda^{60} \sigma^{59} N^{59}(0) I_{th} \mathfrak{J} \quad (26)$$

Der Faktor \mathfrak{J} , der alle Störgrößen, die die Aktivierung des Co^{59} beeinflussen, enthält, hängt transzendent von I_{th} ab. Der Fall $\mathfrak{J} = 1$ beschreibt einen idealen Integrator, bei dem keine durch Aktivierung gebildeten Kerne zerfallen, keine dieser Kerne durch Neutroneneinfang aufaktiviert werden, sowie kein Abbrand der zur Aktivierung benutzten Kerne auftritt. In Wirklichkeit trifft diese Idealisierung nicht zu, so daß die Größe \mathfrak{J} stets kleiner als 1 ist und bei der Berechnung berücksichtigt werden muß.

Die Größe \mathfrak{J} wird durch eine iterative Näherung beliebig genau ermittelt. Ausgehend von $\mathfrak{J}_0 = 1$ wird die zugehörige Fluenz I_{th_1} nach Gleichung (26) bestimmt. Mit Gleichung (25)

wird unter Berücksichtigung des Wertes I_{th_1} der neue Korrekturfaktor ϑ_1 errechnet. Die folgenden Näherungsschritte ergeben sich aus

$$I_{th_n} = I_{th_1} / \vartheta_{n-1} \quad (27)$$

Nach einer hinreichenden Zahl von Iterationsschritten konvergiert die Näherung gegen die wahre Fluenz I_{th}' [41]. Für das Näherungsschema sind mit Ausnahme der gesamten Einsatzzeit t lediglich Größen erforderlich, die als nukleare Parameter des betrachteten Fluenzdetektors bekannt sind.

Die Annahme zeitlich konstanter Neutronenflußdichte bei der Berechnung der Fluenz aus einer durch einen echten zeitlichen thermischen Neutronenflußdichteverlauf induzierten Aktivität verursacht einen Fehler, dessen Größe bestimmt wurde. Unter Benutzung einer beliebig vorgegebenen Flußdichteverteilung ergab sich nach Gleichung (21) und (22) die entstandene Aktivität. Daraus errechnete sich nach Gleichung (26) die Fluenz unter der Annahme zeitlich konstanter Flußdichte. Die so ermittelte Fluenz I_{th}' wurde mit der sich aus dem vorgegebenen Flußdichteverlauf ergebenden Fluenz

$$I_{th} = \int_0^t \phi_{th}(t') dt' \quad (28)$$

verglichen und der relative Fehler

$$\epsilon = \frac{|I_{th} - I_{th}'|}{I_{th}} \quad (29)$$

bestimmt.

5.6.2. Ergebnisse

Für die Fehlerbestimmung wurde ein Flußverlauf betrachtet, der mäanderförmig zwischen $\phi = \phi_0$ und $\phi = 0$ verläuft. Der Abstand zwischen zwei ansteigenden Flanken wird mit ω , die Breite des Zeitintervalls, in dem $\phi = \phi_0$ ist, mit τ bezeichnet.

Die Rechnungen wurden für einen Bereich von ω zwischen 1 Tag und 100 Tagen ausgeführt, während τ Werte von 1 % bis 100 % der Größe von ω annahm. Während der Zeit $\omega - \tau$ verstrich eine periodisch wiederkehrende Abklingzeit.

Die gesamte Einsatzzeit t_E lag zwischen 100 Tagen und 2000 Tagen. Als Wert für ϕ_0 wurde ein Neutronenfluß von $1 \cdot 10^{14}$ n/cm²s angenommen. Die Fluenz ergab Werte von $4 \cdot 10^{19}$ n/cm² bis $2 \cdot 10^{22}$ n/cm².

Der für diese Art des Flußdichteverlaufs ermittelte Fluenzfehler erreichte im Maximum 1,75 % bei Intervallen von 5 Tagen Bestrahlungszeit und 95 Tagen Abklingzeit.

In Abb. 5.4 ist der relative Fluenzfehler ε in % in Abhängigkeit von der zwischen den Bestrahlungszeiten liegenden Abklingzeiten $\omega - \tau$ aufgetragen. Der Kurvenparameter ist die Einsatzzeit zwischen 100 Tagen und 2000 Tagen. Die errechneten Fehler liegen im schraffierten Bereich und steigen mit wachsender Abklingzeit zwischen den Bestrahlungszeiten von 0 auf 1,75 %.

Bei mäanderförmigem Flußdichteverlauf zwischen $\phi = \phi_0$ und $\phi = 0,4 \phi_0$, d.h. zwischen Vollast und 40 % Teillast, liegen die Fehler stets unterhalb des schraffierten Bereiches und erreichen für $\omega = 100$, $\tau = 50$ ($\omega - \tau = 50$) Maximalwerte von 0,42 % für eine Einsatzzeit von 100 Tagen und von 0,57 % für eine Einsatzzeit von 2000 Tagen. Für kleinere bzw. größere Werte von $\omega - \tau$ sind die Fehler kleiner, da sich für beide Bereiche das Flußdichteverhalten mehr und mehr einer zeit-

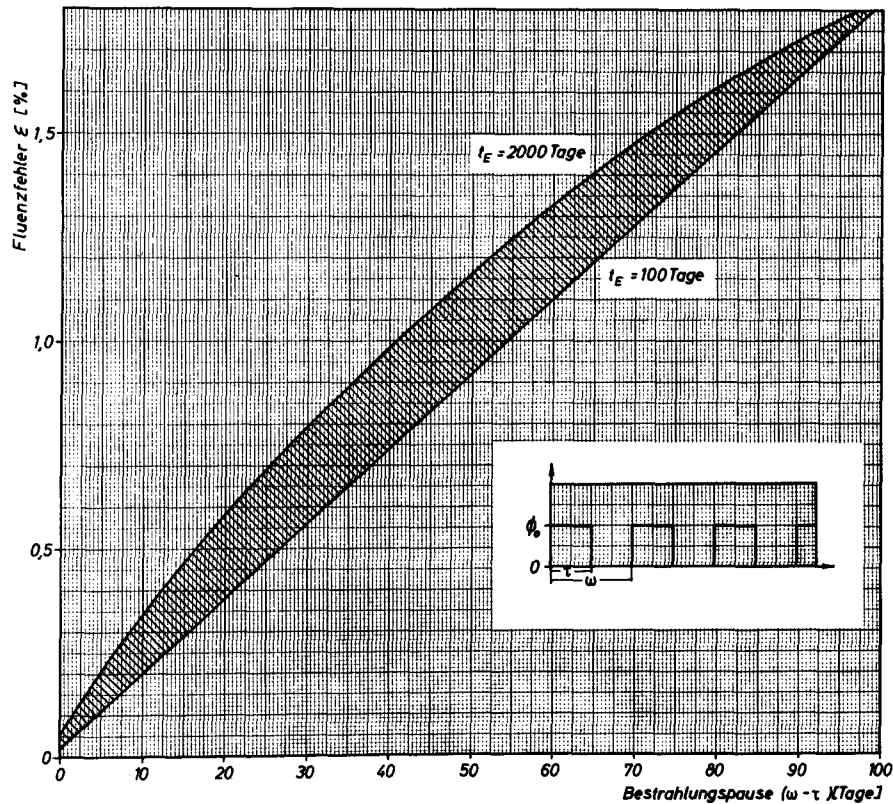


Abb. 5.4 Fluenzfehler als Funktion der Abklingzeit bei mäanderförmigem Flußdichteverlauf (zwischen ϕ_0 und 0. t_E : Einsatzzeit)

lich konstanten Flußdichte ϕ_0 bzw. $0,4 \phi_0$ nähert.

Für den Fall verschwindender Flußdichte im Zeitintervall τ und maximaler Flußdichte $\phi = \phi_0$ im Intervall $\omega - \tau$ ergibt sich nach Abb. 5.5 der gleiche Verlauf des Fluenzfehlers wie in Abb. 5.4, jedoch sind die Kurven geringfügig zu kleineren Werten von ε verschoben.

Die Größe der Fehler ist nur abhängig von den Bestrahlungs- und Abklingzeiten sowie von der Einsatzzeit, die bei der Rechnung benutzt wurden. Im betrachteten Fluenzbereich ist der Einfluß der integrierten Neutronenflußdichte nur gering.

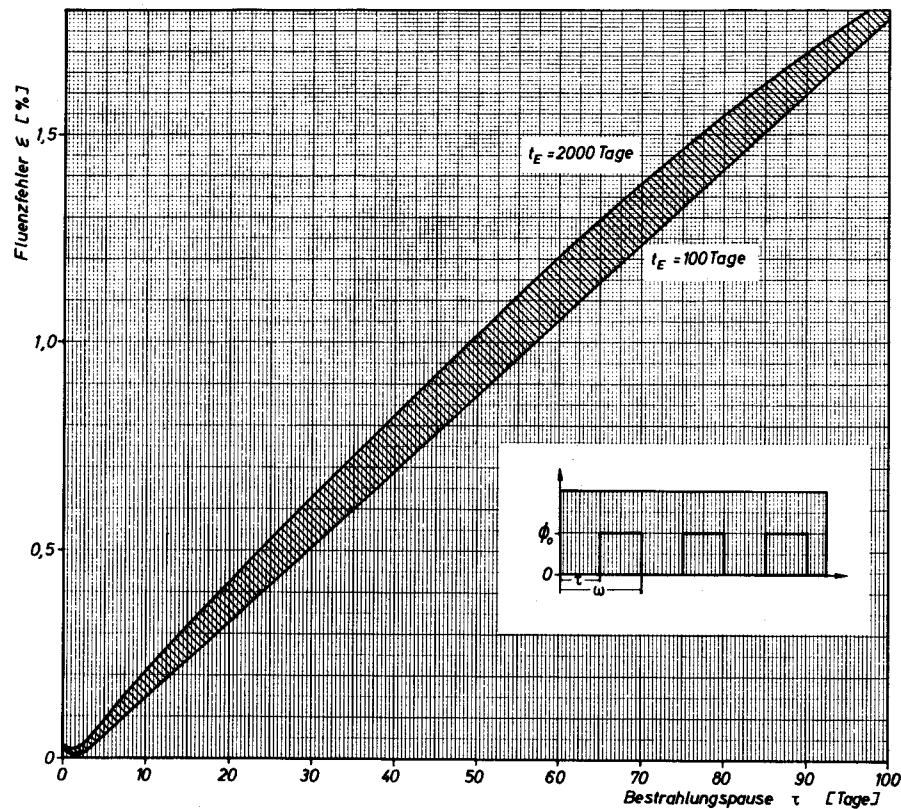


Abb. 5.5 Fluenzfehler als Funktion der Abklingzeit bei mäanderförmigem Flußdichteverlauf zwischen 0 und ϕ_0 .
 t_E : Einsatzzeit

Ähnliche Berechnungen, die bei EURATOM für Einsatzzeiten von 360 Tagen durchgeführt wurden [41], lieferten Ergebnisse, die in dem in Abb. 5.4 schraffiert dargestellten Fehlerbereich liegen.

Weitere Untersuchungen der Fehler bei der Fluenzbestimmung wurden mit einem Flußdichteverlauf in Form eines Sägezahns unternommen. Der Abstand zwischen zwei ansteigenden Flanken wurde wiederum mit ω , der zeitliche Abstand zwischen minimaler und maximaler Amplitude, d.h. der ansteigende Ast, mit τ bezeichnet. Der Flußdichteabfall lag im Zeitintervall $\omega - \tau$. Die Neutronenflußdichte variierte zwischen $\phi=0$ und $\phi=\phi_0$, mit $\phi_0=1 \cdot 10^{14}$ n/cm²s. Der betrachtete Fluenzbereich

lag zwischen $4 \cdot 10^{20}$ und $1 \cdot 10^{22}$ n/cm².

In Abb. 5.6 ist das Ergebnis der Rechnungen dargestellt.

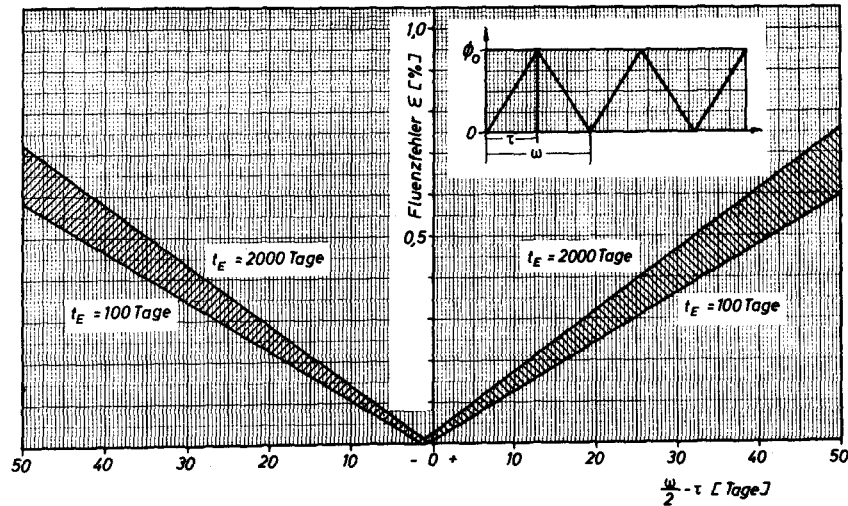


Abb. 5.6 Fluenzfehler in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ bei sägezahnförmigem Flußdichteverlauf zwischen 0 und ϕ_0 . t_E :Einsatzzeit

Der Fluenzfehler ϵ wurde in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ aufgetragen. Die Größe ω nahm Werte zwischen 0 und 100 Tagen an, τ verlief zwischen 1 und 100 % der Werte von ω . Der Fehler steigt sowohl für wachsende positive als auch wachsende negative Werte von $\frac{\omega}{2} - \tau$ an. Für Einsatzzeiten zwischen 100 und 2000 Tagen liegen die berechneten Fehler innerhalb des schraffierten Bereiches. Für die begrenzenden Einsatzzeiten ergeben sich Gerade, die etwa bei $\frac{\omega}{2} - \tau = -1$ die X-Achse schneiden. Für $\frac{\omega}{2} - \tau = 50$ ergibt sich für 1000 Tage ein Wert von $\epsilon = 0.66$ %, für $\frac{\omega}{2} - \tau = -50$ ergibt sich $\epsilon = 0.64$ %.

Die Betrachtung eines sägezahnartigen Flußdichteverlaufs zwischen $\phi = 0.4 \phi_0$ und $\phi = \phi_0$ ergab für den Fluenzfehler ϵ in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ (Abb. 5.7) ebenfalls für Einsatzzeiten zwischen 100 Tagen und 2000 Tagen Gerade, die mit wachsenden positiven und negativen Werten von $\frac{\omega}{2} - \tau$ ansteigen.

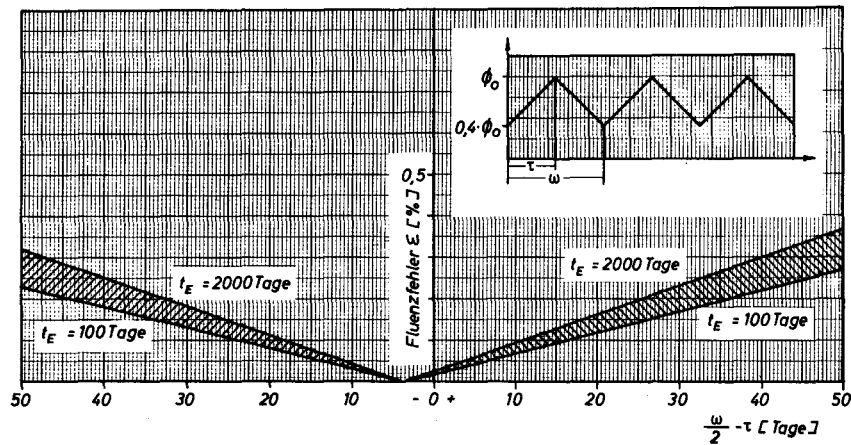


Abb. 5.7 Fluenzfehler in Abhängigkeit von $\frac{\omega}{2} - \tau$ bei sägezahnförmigem Flußdichteverlauf zwischen $0.4 \phi_0$ und ϕ_0 . t_E : Einsatzzeit

Bei etwa $\frac{\omega}{2} - \tau = -4$ schneiden die Geraden die X-Achse. Die für $\frac{\omega}{2} - \tau = \pm 50$ errechneten Fehler erreichen jedoch nur Werte von $\epsilon = 0.32 \%$ bzw. $\epsilon = 0.26 \%$.

Für weitere Berechnungen wurde eine zeitlich veränderliche Neutronenflußdichte zugrunde gelegt, die ein Brennelement auf seinem Weg durch den Kugelhaufen durchläuft. Zu diesem Zweck erfolgte eine Umwandlung des axialen thermischen Neutronenflußdichteverlaufs im THTR [57] in eine zeitabhängige Funktion. Als Durchlaufzeiten wurden die Werte 1100, 546, 363 und 180 Tage eingesetzt. Diese Zeiten ergeben sich, wenn bei einer Lebensdauer von 1100 Tagen die Kugel insgesamt 1 Durchlauf, 2, 3 oder 6 Durchläufe durchführt. Zwischen 2 Durchläufen lag eine Zeit von 4 Tagen bei einer Flußdichte $\phi=0$ für den A_u fenthalt im Abzugsrohr.

Die so entstandenen zeitlichen Flußdichteverläufe wurden sowohl für Vollast als auch für 40 % Teillast nach der Methode der kleinsten Fehlerquadrate durch ein Polynom angenähert, das bei der Berechnung der Fluenzfehler als Flußdichtefunktion benutzt wurde.

Für diese Flußdichteverläufe wurden die durch die Annahme einer über die Einsatzzeit konstanten Neutronenflußdichte entstehenden Fehler der Fluenzbestimmung ermittelt. In Abb. 5.8 sind die berechneten Fehler ϵ in Abhängigkeit von der Coredurchlaufzeit zuzüglich einer Zeit von 4 Tagen im Abzugsrohr aufgetragen. Parameter ist die Anzahl der Durchläufe

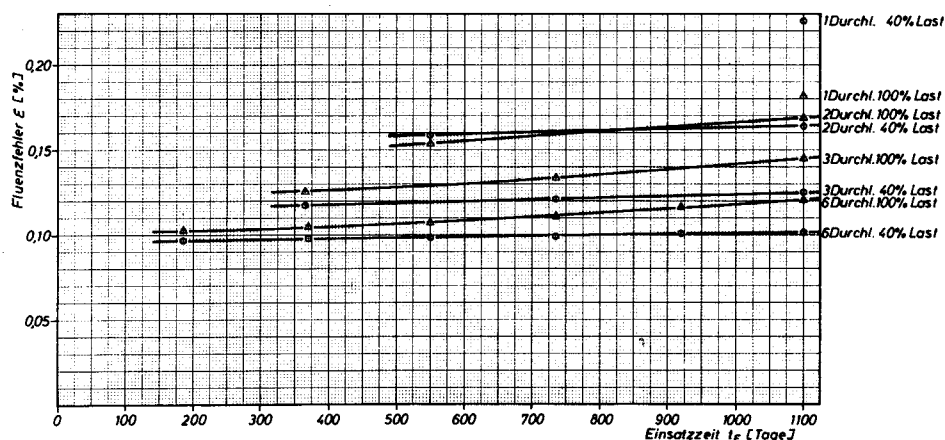


Abb. 5.8 Fluenzfehler als Funktion der Coredurchlaufzeit bei verschiedenen Lastfaktoren und variabler Anzahl der Durchläufe

für eine Gesamteinsatzzeit von ca. 1100 Tagen bei Voll- und Teillast. Bei vorgegebener Anzahl der Durchläufe sind die Fehler über den gesamten Bereich nahezu konstant. Der größte Fehler wird für einen einzigen Durchlauf bei 40 % Last mit 0,23 % erreicht.

Abb. 5.9 zeigt die Auftragung des Fluenzfehlers ϵ in Abhängigkeit von der Anzahl der Durchläufe. Bei der Darstellung wurden Gesamteinsatzzeiten von 1100 Tagen und 360 Tagen für Vollast und 40 % Teillast berücksichtigt. Mit von 1 auf 6 wachsender Anzahl von Durchläufen nimmt der Fehler bei 40 % Last von 0,23 % auf 0,1 % ab. Bei Vollast ist eine Abnahme von 0,18 % auf 0,12 % zu verzeichnen. Die Berechnungen bezogen sich jeweils auf den Zeitpunkt 4 Tage nach Ende eines Durchlaufs. Daraus folgt, daß für eine nahezu beliebige Be-

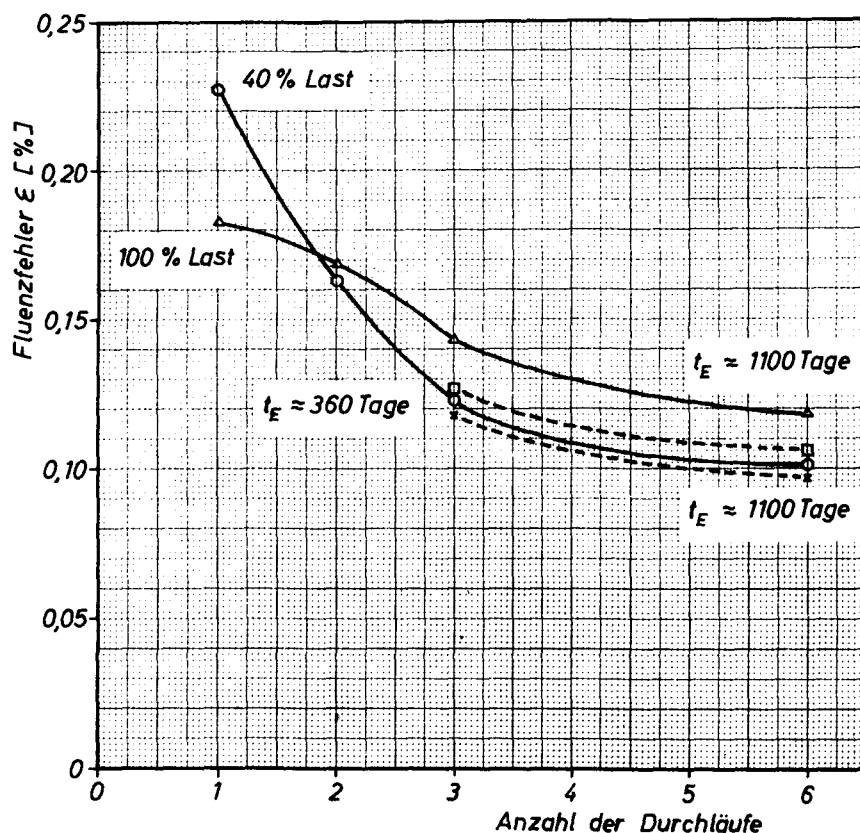


Abb. 5.9 Fluenzfehler als Funktion der Anzahl der Durchläufe

strahlungsgeschichte der durch das Core laufenden Kugeln der Fluenzfehler stets kleiner als 0.25 % bleibt.

Wird die Bestrahlung innerhalb eines Durchlaufs abgebrochen und dann eine Messung durchgeführt, so ergibt sich ein Fehler, der recht genau durch

$$\epsilon = \left| 1 - e^{-(t_s - \frac{t}{2}) \lambda^{60}} \right| \quad (30)$$

dargestellt werden kann [41]. Die Größe t_s bedeutet den zeitlichen Schwerpunkt der Flußdichteverteilung

$$t_s = \frac{\int_0^t t' \phi(t') dt'}{\int_0^t \phi(t') dt'} \quad (31)$$

Damit können bei den benutzten Flußdichteverläufen im ungünstigsten Falle Fehler von 2,2 % auftreten. Dies würde jedoch für die Praxis den Abbruch des Betriebes für längere Zeit bei fortgesetztem Kugeldurchlauf voraussetzen.

Zur Demonstration der extrem guten Eignung von Kobalt als Fluenzdetektor wurden für einen mäanderförmigen Neutronenflußdichteverlauf völlig irreale Zeitverhältnisse von 10 Tagen Bestrahlungszeit und 990 Tagen Abklingzeit gewählt. Die Rechnungen ergaben für die Annahme einer konstanten Neutronenflußdichte über die gesamte Einsatzzeit von 1000 Tagen lediglich einen Fehler von 10 % bei einer Fluenz von $8,64 \cdot 10^{21} \text{ n/cm}^2$ gegenüber den Werten bei strenger Lösung.

Für das Iterationsschema Gleichung (27) ist die Annahme der Einsatzzeit erforderlich, deren Größe nur recht ungenau bekannt ist. Aus diesem Grunde wurde errechnet, welche Abweichungen bei der Fluenz als Ergebnis der Iteration auftreten, wenn die Einsatzzeit von 300 Tagen zwischen 100 und 700 Tagen variiert. Die gleiche Berechnung wurde für den Variationsbereich der Einsatzzeit von 1000 Tagen zwischen 400 und 1600 Tagen durchgeführt. Nach Einsatzzeiten von etwa 300 und 1000 Tagen sollten Abbrandbestimmungen am THTR-Brennelement vorgenommen werden.

In den angegebenen Variationsbereichen ändern sich die aus der Iteration gewonnenen Fluenzwerte zwischen -4 % und +7,5 % bzw. -12 % und +13 %. Wird generell für die Fluenzbestimmung aus den Ergebnissen der Aktivitätsmessung eine Einsatzzeit von 650 Tagen angenommen, entsteht im ungünstigsten Fall ein Fehler in der Fluenzbestimmung von 6,5 %.

Abb. 4.4 zeigt, daß die Fehler in der Fluenzbestimmung sich mit wachsendem Abbrand stets weniger auf die Abbrandfehler auswirken. Somit erfahren alle Fluenzfehler, ob sie durch die Annahme zeitlich konstanter Neutronenflußdichte oder durch

willkürlich festgesetzte Einsatzzeit entstehen, in ihrer Auswirkung auf den Abbrandwert eine Fehleruntersetzung, die bei etwa 65 % Abbrand einen Faktor 0,5 annimmt. Selbst unter ungünstigsten Verhältnissen wird durch die Fluenzbestimmung über die Co^{60} -Aktivität ein Abbrandfehler von 7,5 % nicht überschritten.

6. Hinweise für die technische Anwendung

Bei der technischen Anwendung des Verfahrens können verschiedene Hilfsmittel angewandt werden, welche die Durchführung der Abbrandmessungen verbessern.

6.1. Anti-Compton-Anordnung

Zur Unterdrückung des Compton-Untergrundes von Photolinien größerer Energie wird der Ge(Li)-Detektor mit einer Anti-Compton-Anordnung umgeben. Zu diesem Zweck wird ein NaJ(Tl)-Kristall verwendet, in dessen zentraler Bohrung sich der Ge(Li)-Detektor befindet. Die elektronische Schaltung wird derart vorgenommen, daß die Impulse, die der Zentralkristall liefert, nur dann zum Spektrum oder zur Zählung im Einkanalanalysator beitragen, wenn nicht gleichzeitig ein Impuls im umgebenden Kristall nachgewiesen wird. Somit gelangen nur Impulse zur Zählung, die von der Photolinie des Gammazerfalls herrühren. Das Peak/Compton-Verhältnis kann um den Faktor 7 verbessert werden [64].

Bei Benutzung dieser Anordnung ist es möglich, auf den zweiten Einkanalanalysatorzweig zur Subtraktion des Untergrundes zu verzichten. Die nutzbare Zählrate wird nur unbedeutend durch zufällige Koinzidenzen beeinträchtigt. Bei hohen Intensitäten von zahlreichen Gammalinien kann dieser Effekt allerdings eine Verlängerung der Meßzeit zur Folge haben.

Die Anordnung ist jedoch nur nützlich bei Messungen von kurzzeitig, d.h. weniger als etwa 100 Tage, bestrahlten Brennstoffen, da sonst, wie in Abschnitt 3.2 dargestellt, das Verhältnis der Nutzlinie zum Untergrund so groß ist, daß eine derartige Anordnung entbehrlich wird.

6.2. Kollimatoren

Die Aktivität der zur Messung gelangenden Brennelemente erreicht Werte bis zu 2000 Ci/g U^{235} . Die zulässige Gammadosisleistung am Ort des Detektors ist jedoch begrenzt, so daß Kollimatoren erforderlich sind, die eine Dosisleistungsverringerng um mehrere Größenordnungen bewirken. Die durch die Benutzung von Kollimatoren auftretende Schwächung der Linien geringer Energie ist für das Verfahren unbedeutend, ja sogar von Nutzen, da nur höherenergetische Gammastrahlen über 1 MeV zur Messung verwandt werden, die relativ zu Gammaquanten niedriger Energie erheblich weniger geschwächt werden. Durch die Anwendung von Kollimatoren wird eine Verbesserung des Verhältnisses Impulsrate der Nutzlinie zu Gesamtpulsrate erreicht. Außerdem werden die Richtung der Gammastrahlen und der Einstrahlungsort festgelegt, wodurch gleichzeitig Neben- und Streustrahlungen auf ein Minimum reduziert werden.

6.3. Relative Eichung der Apparatur

Aus der Anzahl der Impulse unter dem Photopeak des Fluenzisotops kann nur unter Berücksichtigung des γ -Ansprechvermögens des Detektors, der geometrischen Anordnung, des wirksamen Raumwinkels, der Selbstabsorption der Gammaquanten im Brennstoff und im Hüllmaterial, sowie des relativen Häufigkeitsanteils des betreffenden Zerfalls die Aktivität des betrachteten Isotops bestimmt werden. Daraus läßt sich bei Kenntnis der Absorptionsquerschnitte von Spaltstoff und Fluenzisotop, der spektralen Indizes [65] und der Zeitkorrekturen, die dem radioaktiven Zerfall sowie der Aufaktivierung Rechnung tragen, der Abbrand ermitteln.

Um auf die genaue Kenntnis der Parameter und Gerätekonstanten verzichten zu können, empfiehlt es sich, eine relative Eichung der Apparatur vorzunehmen. Die Eichmethode geht davon aus, daß im Reaktor stets Brennelemente des gleichen

Typs verwendet werden. Eine bestimmte Anzahl dieser Brennelemente wird mit beigemischtem Fluenzisotop bestrahlt und bis zu einem gewünschten Abbrandzustand abgebrannt, der für jedes Einzelelement verschieden ist. Die Aktivität des zugegebenen Isotops wird in relativen Einheiten gemessen und daraus unter Berücksichtigung der Zeitkorrekturen die Fluenz, ebenfalls in relativen Einheiten, ermittelt. Danach wird jedes betrachtete Brennelement einzeln aufbereitet. Der absolute Abbrandwert wird durch chemische Analyse durch zerstörende Verfahren bestimmt. Die Auftragung des absoluten Abbrandes in Abhängigkeit von der relativ bestimmten Fluenz, die aus der relativen Aktivität des beigemischten Fluenzisotops ermittelt wurde, liefert die Eichfunktion, die für den untersuchten Brennelementtyp mit festem Brennstoffeinsatz und vorgeschriebener Beimischung des aktivierbaren Isotops stets Gültigkeit hat.

Die Langzeitstabilität wird durch Messung der Aktivität einer geeichten Standardprobe, die aus dem gleichen Fluenzisotop besteht, das bei der Abbrandmessung benutzt wird, in regelmäßigen Zeitabständen vorgenommen. Die Apparatur wird auf die gleichen Einstellungsdaten einjustiert, wie bei der Aufnahme der Eichfunktion. Damit werden für jede Messung die gleichen apparativen Bedingungen vorgegeben.

Mit diesem Verfahren ist eine langfristige Anwendung des Verfahrens ohne Unterbrechung im Betriebsfall möglich.

7. Weitere Anwendungsbereiche des Verfahrens

Neben der Bestimmung des Abbrandzustandes von Spaltstoffen lassen sich auch andere, durch Neutronen eingeleitete Vorgänge im Reaktor mit Hilfe von Monitorisotopen überwachen. Die Auswahl der in den Tabellen 2.1 und 2.2 aufgeführten Isotope richtet sich nach dem Spektralbereich, in dem sich die Reaktionen, die überwacht werden sollen, abspielen.

Zur Erzielung von Informationen über den Brutvorgang bei der Konversion von Th^{232} zu U^{233} sind Angaben über die thermische sowie über die epithermische Fluenz erforderlich, die eine Aussage über die Menge des entstandenen Th^{233} ermöglichen. Die gleichzeitige Benutzung von Kobalt als Fluenzdetektor im thermischen Bereich und Silber für den epithermischen Bereich liefert die benötigten Daten, um mit Hilfe digitaler Rechenprogramme die Überwachung des Brutvorganges durchzuführen.

Das Problem der Spaltflußüberwachung wirft die Frage nach Informationen über die Größe des Spaltstoffinventars, auch bei verschiedenen Spaltstoffen, auf. Hierbei kann die gemeinsame Benutzung zweier Verfahren, z.B. eines reaktorkinetischen zur Bestimmung der Gesamtspaltstoffmenge U^{235} und U^{233} sowie des hier geschilderten zur Bestimmung der restlichen Menge U^{235} aus einer Abbrandbestimmung, nützlich sein, wodurch beide Uranisotope nebeneinander quantitativ analysiert werden.

Bei Abbrandbestimmungen nach langen Abklingzeiten, für die der Co^{60} -Zerfall bereits bemerkenswert ist, kann mit Hilfe der in Abschnitt 5.6 beschriebenen Rechnungen ein Ergebnis erzielt werden, wenn die dabei auftretenden Fehler tolerierbar sind. Anderenfalls können durch die Aktivitätsmessung von zwei Gammalinien stark unterschiedlicher Halbwertszeit oder durch mäßig exakte Zeitangaben die Aktivitätsver-

luste des langlebigen Isotops während der Kühlzeit hinreichend genau ermittelt werden.

Wegen der langen Abklingzeit und der dann möglichen großen Meßzeit läßt sich die Abbrandangabe mit der Genauigkeit durchführen, die für den jeweiligen Anwendungsbereich gefordert wird.

8. Schlußbetrachtung

Die Ausführungen zeigen, daß die Methode der Abbrandbestimmung durch irreversible Beimischung aktivierbarer Isotope anwendbar ist. Unter den natürlich vorkommenden Isotopen lassen sich verschiedene angeben, die die geforderten Bedingungen erfüllen. Daneben existieren Wege der Beimischung, die beschritten werden können, ohne die bis heute erzielten Ergebnisse für die Brennelementherstellung in Frage zu stellen.

Unter den verschärften Bedingungen, die die Abbrandbestimmung bei Kugelhaufenreaktoren wegen der kurzen Kühlzeit, kurzen Meßzeit und langen Einsatzzeit ohne Kenntnisse über die Bestrahlungsgeschichte stellt, ist bei geeignetem apparativem Aufbau eine den Genauigkeitsanforderungen entsprechende Benutzung des Verfahrens durchaus möglich.

Literaturverzeichnis

- [1] D. Gupta; W. Häfele: Das Prinzip eines instrumentierten Systems zur Überwachung des Spaltflusses auf friedlichem Sektor der Kernenergie. ATKE 13 S. 229 (1968)
- [2] D. Gupta: Das Projekt Spaltflußkontrolle in Karlsruhe. ATW 15 S. 35 (Januar 1970)
- [3] D. Gupta et al.: Das Projekt Spaltflußkontrolle in Karlsruhe. Das Programm und einige der erzielten Ergebnisse. Vortrag Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Berlin 1970
- [4] B.F. Rider; C.P. Ruiz; J.P. Peterson: GEAP-4716 (1964), GEAP-4893 (1965), GEAP-4950 (1965), GEAP-5270 (1967), Trans.Am.Nucl.Soc. 7 (1964), Trans.Am.Nucl.Soc. 8 (1965)
- [5] B.F. Rider; F.R. Smith; J.L. Jaeck: GEAP-4776 (1964)
- [6] F.L. Lismann; W.J. Maeck; J.E. Rein: IDO-14663 (1965), IDO-14681 (1967), IN-1113 (1967)
- [7] F.L. Lismann; W.J. Maeck, R.E. Forster: IN-1064 (1967)
- [8] J.E. Rein; W.J. Maeck: IDO-14649 (1964), IDO-14656 (1965), IDO-14663 (1965)
- [9] W.J. Maeck: IDO-14642 (1965)
- [10] R. Wertenbach; A.V. Baeckmann: Verfahren zur radiochemischen Bestimmung von Spaltelementaktivitäten in bestrahlten Brennelementen. AED-Conf. S. 306-11 (1966)

- [11] D.J. Savage; J.L. Drummond: Separation of Nd for the determination of the burnup of nuclear fuels. TRG-Report-1496 (1967)
- [12] F.P. Viehboeck: Atomkernenergie 11 S. 131 (1966), Acta Phys. Austr. 20 S. 314 (1965), SGAE-PH-11 (1964)
- [13] M. Terrani; S. Terrani: Quantitative analysis of fissile materials by delayed neutron emission. Energia Nucleare 14 S. 638 (1967)
- [14] F. Cavallari et al.: The analysis of fissible nuclide mixtures by delayed neutron emission. Nucl. Instr. Meth. 79 S. 69 (1970)
- [15] H. Krininger; S. Wiesner; C. Faber: Pulsed neutron method for non destructive and simultaneous determination of the U-235 and Pu-239 contents of irradiated and non irradiated fuel elements. Nucl. Instr. Meth. 73 S. 13 (1969)
- [16] E. Ruppert; H. Krininger: Die Anwendung einer Bremszeit-spektrometeranordnung zur zerstörungsfreien Bestimmung des Spaltstoffgehaltes. Vortrag Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Berlin 1970
- [17] J. Jacquemin et al.: Meß- und Steuereinrichtungen der Beschickungsanlage des AVR. Atomwirtschaft S. 252 (1966)
- [18] W. Michaelis: Non-destructive analysis of nuclear fuels by radioactive neutron capture. ATKE 14 S. 347 (1969)
- [19] E. Udrea; L. Mantescu: Supplementary data on the fuel burnup in the VVR-S-I.F.A. reactor Bucharest-Rumania. Rev. Roumaine Phys. 91 (1964)

- [20] H.J. Bormann; E. Münch: Interner Bericht ZFR/WT - 4/67
- [21] W. Rausch: Non-destructive testing of fuel elements in pebble-bed reactors. Paper 12th Metallurgical Congress on "Non-Destructive testing and control in the field of nuclear Metallurgy and Technology". Saclay Juni 1968
- [22] K.P. Bachus et al.: Abbrandmessung kugelförmiger Brennelemente mittels eines Abbrandmeßreaktors. Vortrag Reaktortagung des Deutschen Atomforums, Berlin 1970
- [23] E.L. Dieck: Die zerstörungsfreie Bestimmung des Kernbrennstoffgehaltes oder des Abbrandes an Brennstoffproben oder Reaktorbrennelementen. JÜL-529-RX (1968)
- [24] M.J. Higatsberger et al.: Operating experience with the semiconductor gamma-compton-spectrometer to determine burn-up and history of nuclear fuel. SGAE-PH-24 (1965)
- [25] N.C. Rasmussen; J.A. Sovka; S.A. Mayman: The non-destructive measurement of burn-up by gamma-ray spectroscopy. IAEA conference on nuclear materials management, Wien 1965
- [26] H. Büker: Die Messung des Abbrandzustandes kugelförmiger Brennelemente mit Hilfe eines hochauflösenden Halbleiter-Gamma-Spektrometers. Dissertation TH Aachen, November 1966
- [27] H. Büker: Die Messung des Abbrandzustandes kugelförmiger Reaktorbrennelemente mit Hilfe eines hochauflösenden Halbleiter-Gamma-Spektrometers. Nukleonik 9 S. 346 (1967)
- [28] Christensen, Murphy: Determination of relative burnup by γ -scanning EBWR fuel rods. BNWL-653

- [29] R.S. Forsyth et al.: Burn-up determination by high resolution gamma spectrometry: Fission product migration studies. AE-272 (1967), AE-267 (1967)
- [30] P. Popa; M. De Coster; D. Langela: Burn-up determination of nuclear fuels by high resolution gamma spectroscopy, track formation in solid state detectors and neutron dose measurements. EURATOM Arbeitsgruppe Dosimetrie, September 1968, Brüssel
- [31] J. Knoth; R. Marten; H. Schwenke: Messung des Abbrandes bei Nulleistungsversuchen durch γ -Spektroskopie. ATKE 13 S. 67 (1968)
- [32] R. Marten; H. Rosomm: Zerstörungsfreie Abbrandbestimmung mittels γ -Spektroskopie. Teil 1: Eine automatische Apparatur zur Bestimmung von Abbrandprofilen an Brennstäben. ATKE 14 S. 339 (1969)
- [33] J. Knoth et al.: Zerstörungsfreie Abbrandbestimmung mittels γ -Spektroskopie. Teil 2: Berechnung des Abbrandes aus den γ -Spektren von Spaltprodukten. ATKE 14 S. 342 (1969)
- [34] Robin et al.: Determination par spectroscopie γ du taux d'irradiation des elements combustibles des reacteurs de puissance. CEA-R-3863 (1969)
- [35] S. Hiller: Untersuchung zur absoluten zerstörungsfreien Abbrandbestimmung von Reaktorbrennstäben. Dissertation Universität Erlangen 1969
- [36] G.E. Gordon; J.W. Harvey, H. Nakahara: Measuring fission spectra with semiconductor detectors. Nucleonics 24 S. 62 (1966)

- [37] H. Petri; G. Riepe: Halbleiterspektren von Uran-Spaltproduktgemischen. Tagungsbericht "Halbleiterdetektoren in Strahlenschutz und Strahlenmeßtechnik" S. 164-170 11.-13. 5. 1967 Neuherberg bei München
- [38] L. Buba; H. Hick; K. Rumpold: Vergleich der Abbrandbestimmung mittels Sondenaktivierung und Gamma-Spektroskopie für ein MTR-Element. ATKE 11 S. 167 (1966)
- [39] R.W. Durham: Burnup determination in ceramic fuels Transm. Am. Nucl. Soc. 8 S. 9 (1965)
- [40] L. Weise: Die Bestimmung der Fluenz thermischer Neutronen mit Hilfe von Kobaltsonden. JÜL-495-RX, Juli 1967
- [41] J. Debrue; F. Motte: Mesure des flux integres an moyen du Cobalt. Groupe de Dosimetrie d'EURATOM (1961)
- [42] M.J. Cabell; M. Wilkins: A comparison of Pu^{240} and Ag^{109} as epithermal index monitors for long irradiation. AERE-R 4866
- [43] W. Kunz; J. Schintlmeier: Tabelle der Atomkerne (1958)
- [44] R. Vaninbroukx: Nucl. Sci. Eng. 24 S. 87 (1966)
- [45] K.H. Beckurts; K. Wirtz: Neutron Physics. Berlin-Göttingen-Heidelberg-New York 1964, Springer-Verlag
- [46] J. Tobailem: Ann. phys. 10 S. 783 (1955)
- [47] B.S. Dzhelepov; L.K. Peker: Decay schemes of radioactive nuclei. Oxford-London-New York-Paris 1961, Pergamon-Press S. 136

- [48] C.M. Lederer; J.M. Hollander; J. Perlman: Tables of Isotopes 6th Edition. New York-London-Sidney 1968, John Wiley and Sons
- [49] R.G. Hart; R.L. Graham: Canad. J. Phys. 44 S. 1321 (1963)
- [50] W. Seelmann-Eggebert et al.: Nuklidkarte 3. Auflage 1968
- [51] H.C. Honeck: THERMOS: A thermalization transport code for reactor lattice calculations. BNL-5826
- [52] E. Teuchert: Private Mitteilung, Mai 1970
- [53] T. Paradellis; S. Hontzeas: A semi-empirical efficiency equation for Ge(Li)-detectors. Nucl. Instr. Meth. 73 S. 210 (1969)
- [54] H. Hick; R. Pepelnik: Summing Ge(Li)-compton spectrometer with high peak-to-tail ratio. Nucl. Instr. Meth. 68 S. 240 (1969)
- [55] J.H. Bonnenberg: Der Einfluß der Radioaktivität abgebrannten Brut- und Brennstoffs von kontinuierlich beschickten Thorium-Hochtemperaturreaktoren auf deren Brennstoffkreislauf. Dissertation TH Aachen 1968
- [56] S. Glasstone: Principles of nuclear reactor engineering. London 1956, Macmillan and Co. S. 398
- [57] THTR. Technischer Bericht THTR-Prototyp 300 MWe Band 1, Stand April 1968. BBC-Krupp Reaktorbau GmbH S. 5.24, Abb. 5.9
- [58] H. Nickel: Private Mitteilung, April 1970

- [59] G. Riepe: Private Mitteilung, Januar 1970
- [60] M.G. Strauss et al.: Rev. Scient. Instr. 38 S. 725
1967
- [61] K. Stock: Firma Wenzel-Tennelec, Private Mitteilung
Mai 1970
- [62] M. Console, A. Daneri, E. Salina: EREBUS, a multigroup
diffusion-depletion program in two dimensions for
IBM-360. FN-E-88 (1967)
- [63] W. Fröhling: Private Mitteilung, Mai 1970
- [64] G. Bertolini, A. Coche: Semiconductor Detectors. Amster-
dam 1968, North-Holland-Publishing Company S. 379
- [65] C.H. Westcott: AECL-1101